



# Microscopie à résonance magnétique détectée mécaniquement

Olivier Klein

## ► To cite this version:

Olivier Klein. Microscopie à résonance magnétique détectée mécaniquement. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2004. tel-00006836

**HAL Id: tel-00006836**

**<https://theses.hal.science/tel-00006836>**

Submitted on 8 Sep 2004

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Pierre et Marie Curie  
(Paris VI)

**HABILITATION À DIRIGER DES RECHERCHES  
SPÉCIALITÉ SCIENCES PHYSIQUES**

présentée par  
Olivier Klein

du Service de Physique de l'État Condensé - CEA Saclay

**Microscopie à résonance magnétique détectée  
mécaniquement**

Soutenue publiquement le 14 Juin 2004  
devant le jury constitué de:

H. Alloul	Président
C. Chappert	Rapporteur
C. Fermon	
J. C. Rivoal	Rapporteur
Y. Samson	Rapporteur
P.E. Wigen	



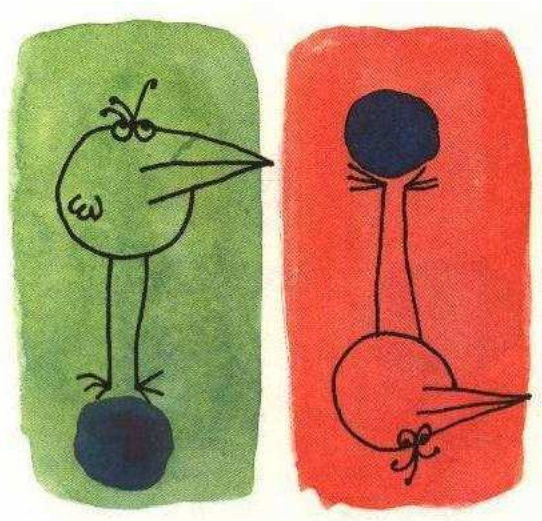


Fig. 1:

*Sur la planète Shadok, il y avait des Shadoks de deux sortes: des Shadoks avec les pieds en bas qui vivaient au-dessus de la planète. Et des Shadoks avec les pieds en haut qui vivaient de l'autre côté et qui servaient à soutenir la planète par en-dessous...*

*Jacques Rouxel (1931-2004)*



# Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Henri Alloul pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de cette habilitation.

J'exprime ensuite ma profonde gratitude aux rapporteurs, Claude Chappert, Jean-Claude Rivoal et Yves Samson pour avoir accepté d'évaluer ce travail.

J'adresse aussi ma sincère reconnaissance à Claude Fermon et Phil Wigen pour leur participation à ce jury.

Je tiens tout particulièrement à remercier les collaborateurs qui m'ont aidé dans la réalisation de ce travail: Vladimir Naletov, Vincent Charbois, Grégoire de Loubens, Michel Viret, Claude Fermon, Jamal Ben Youssef, Gerald Le Goff, Stéphane Guillous, Hubert Pascard, Maurice Goldman, et Olivier Acher.

Enfin, un grand merci à mon épouse et à ma famille pour leur soutien.



# Curriculum vitae

Olivier Klein  
Service de Physique de l'État Condensé  
CEA Orme des Merisiers  
F-91191 Gif Sur Yvette  
Tel: +33(0)1 69 08 75 40  
Mél: oklein@cea.fr

Né le 17 février 1965.  
Agé de 39 ans.

## Formation

---

Université de Californie à Los Angeles Ph.D. en Physique.	1988-1993
École de Physique et Chimie de Paris Diplôme d'ingénieur en Physique.	1985-1988

## Enseignement

---

Ecole Polytechnique Enseignant à la vacation pour les travaux pratiques de physique.	1997-présent
UCLA, Teaching Assistant Tuteur des élèves du premier et deuxième cycle.	1988-1992

## Recherche

---

SPEC, Orme des Merisiers, chercheur CEA Etude des propriétés statiques et dynamiques de dispositifs magnétiques sub-microniques.	1999-présent
LSI, École Polytechnique, chercheur CEA Conception et réalisation d'un microscope à force magnétique appliqué à l'imagerie par résonance magnétique.	1995-1999



**MIT, Postdoctoral Associate** 1993-1995  
 Étude de l'état magnétique d'équilibre d'un système électronique confiné (transistor à un électron).

**UCLA, Research Assistant, G. Grüner** 1990-1993  
 Etude des propriétés électrodynamiques des supraconducteurs par des techniques micro-ondes.

**UCLA, Research Assistant, R. Orbach** 1989-1990  
 Développe une expérience de résonance paramagnétique électronique pour l'étude de la largeur de raie du  $\text{Cu}^{2+}$  à  $1000^\circ\text{C}$  dans le  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ .

**Université de Paris VI, stagiaire** Avril-Juin 1988  
 Mise au point d'une synchronisation laser des miroirs de la station solaire Thémis pour une expérience sur les gerbes cosmiques.

**CERN, stagiaire** Juillet-Décembre 1987  
 Développe l'électronique de la chambre à fils d'Aleph, détecteur implanté le long de l'accélérateur européen "Large Electron Positron".

## Titres et distinctions honorifiques

---

**Prix** May 1993  
 Recipient of Killam fellowship given by the Physics Department of the University of British Columbia.

## Liste de publications

---

1. O. Klein, V. Charbois, V. V. Naletov, and C. Fermon,  
*Direct measurement of the spin-lattice relaxation in a ferromagnet*,  
 J. Magn. Magn. Mater. accepted for publication (2004)
2. O. Klein, and V. V. Naletov,  
*Relaxation measurements by magnetic resonance force microscopy*,  
 C. R. Physique 4 accepted for publication (2004)
3. O. Klein, V. Charbois, V. V. Naletov, and C. Fermon,  
*Measurement of the ferromagnetic relaxation in a micron-size sample*,  
 Phys. Rev. B (Rapid Comm.) **67**, 220407–10 (2003).
4. V. V. Naletov, V. Charbois, O. Klein, and C. Fermon,  
*Quantitative measurement of the ferromagnetic resonance signal by force detection*,  
 Appl. Phys. Lett. **83**, 3132–4 (2003).
5. V. Charbois, V. V. Naletov, J. Ben Youssef, and O. Klein,  
*Influence of the magnetic tip in ferro-Magnetic Resonance Force Microscopy*,

- 
- Appl. Phys. Lett. **80**, 4795–7 (2002).
6. V. Charbois, V. V. Naletov, J. Ben Youssef, and O. Klein,  
*Mechanical detection of FMR spectrum in a normally magnetized YIG disk*,  
J. Appl. Phys. **91**, 7337–9 (2002).
  7. R. Danneau, P. Warin, J. P. Attané, I. Petej, C. Beigné, C. Fermon, O. Klein,  
A. Marty, F. Ott, Y. Samson, and M. Viret,  
*Resistance of individual domain wall in submicron samples*,  
Phys. Rev. Lett. **88**, 157201–4 (2002).
  8. O. Klein, Y. Samson, A. Marty, S. Guillous, M. Viret, C. Fermon, and H. Alloul,  
*Magnetization process in FePd thin films*,  
J. Appl. Phys. **89**, 6781–3 (2001).
  9. M. Viret, Y. Samson, P. Warin, A. Marty, F. Ott, E. Sondergard, O. Klein,  
and C. Fermon,  
*Anisotropy of domain wall resistance*,  
Phys. Rev. Lett. **85**, 3962–5 (2000).
  10. O. Klein, V. Naletov, and H. Alloul,  
*Mechanical detection of nuclear spin relaxation in a micron size crystal*,  
Euro. Phys. J. B **17**, 57–68 (2000).
  11. O. Klein, D. Goldhaber-Gordon, C. d. C. Chamon, and M. Kastner,  
*Magnetic, field dependence of the level spacing of a small electron droplet*,  
Phys. Rev. B (Rapid Comm.) **53**, R4221–4 (1996).
  12. M. Dressel, O. Klein, S. Donovan, and G. Grüner,  
*High frequency resonant techniques for studying the complex electrodynamic response in solids*,  
Ferroelectrics **176**, 285–308 (1996).
  13. M. Kastner, O. Klein, C. d. C. Chamon, D. Tang, D. Abusch-Magder, U. Meirav,  
W. X.-G., and S. Wind,  
*Exchange effects in artificial atoms*,  
Jap. J. of Appl. Phys. **34**, 4369–72 (1995).
  14. M. Dressel, O. Klein, S. Bruder, G. Grüner, K. Carlson, H. Wang, and J. Williams,  
*Surface impedance studies on the electrodynamic response of organic superconductors*,  
Synthetic Metals **70**, 895–8 (1995).
  15. O. Klein, C. d. C. Chamon, D. Tang, D. Abusch-Magder, U. Meirav, X.-G. Wen,  
M. Kastner, and S. Wind,  
*Exchange effects in an artificial atom at high magnetic fields*,  
Phys. Rev. Lett. **74**, 785–9 (1995).
  16. O. Klein, C. d. C. Chamon, D. Tang, D. M. Abusch-Magder, U. Meirav, X.-G. Wen,  
M. Kastner, and S. Wind,  
*Study of a Coulomb island in strong magnetic fields*,  
11th International Conference, High Magnetic Fields in the Physics of Semiconductors.  
World Scientific, Singapore. and 1995 , 472–5 (1995).
-

17. H. Alloul, K. Holczer, Y. Yoshinari, and O. Klein,  
*<sup>39</sup>K NMR study of phase transitions and electronic properties in  $K_3C_{60}$ ,*  
Physica C **235–240**, 2509–10 (1994).
18. E. Foxman, U. Meirav, P. McEuen, M. Kastner, O. Klein, P. Belk, D. Abusch,  
and S. Wind,  
*Crossover from single, level to multilevel transport in artificial atoms,*  
Phys. Rev. B **50**, 14193–9 (1994).
19. M. Dressel, O. Klein, G. Grüner, K. Carlson, H. Wang, and J. Williams,  
*Electrodynamics of the organic superconductors  $\kappa-(BEDT, TTF)_2Cu(NCS)_2$   
and  $\kappa-(BEDT, TTF)_2CuN(CN)_2Br$ ,*  
Phys. Rev. B **50**, 13603–15 (1994).
20. O. Klein, E. Nicol, K. Holczer, and G. Grüner,  
*Conductivity coherence factors in the conventional superconductors Nb and Pb,*  
Phys. Rev. B **50**, 6307–16 (1994).
21. L. Degiorgi, E. J. Nicol, K. Holczer, G. Grüner, P. Whachter, S.-M. Huang,  
J. B. Wiley, and R. B. Kaner,  
*Optical properties of the alkali-doped superconducting fullerenes:  $K_3C_{60}$  and  $Rb_3C_{60}$ ,*  
Phys. Rev. B **49**, 7012–25 (1994).
22. O. Klein,  
*Comment on ‘Microwave determination of the electronic scattering time in  $YBa_2Cu_3O_7$ ’ by D.A. Bonn et al. in Phys. Rev. Lett. 68 2390 (1992),*  
Phys. Rev. Lett. **72**, 1390 (1994).
23. M. Dressel, L. Degiorgi, O. Klein, and G. Grüner, *The electrodynamics of organic superconductors,*  
J. Phys. Chem. Solids **54**, 1411–26 (1993).
24. K. Holczer, O. Klein, H. Alloul, Y. Yoshinari, F. Hippert, S.-M. Huang, R. B. Kaner, and R. L. Whetten,  
*Non-Korringa <sup>13</sup>C nuclear relaxation in the normal state of  $K_3C_{60}$  superconductor,*  
Europhys. Lett. **23**, 63–9 (1993).
25. O. Klein, S. Donovan, M. Dressel, and G. Grüner,  
*Microwave cavity perturbation technique: Principles,*  
Int. J. of Infrared and Millimeter Waves **14**, 2423–57 (1993).
26. S. Donovan, O. Klein, M. Dressel, K. Holczer, and G. Grüner,  
*Microwave cavity perturbation technique: Experimental scheme,*  
Int. J. of Infrared and Millimeter Waves **14**, 2459–87 (1993).
27. M. Dressel, O. Klein, S. Donovan, and G. Grüner,  
*Microwave cavity perturbation technique: Applications,*  
Int. J. of Infrared and Millimeter Waves **14**, 2489–517 (1993).
28. H. Alloul, H. Mahajan, H. Casalta, and O. Klein,  
*<sup>89</sup>Y NMR study of the anisotropy of the static and dynamic susceptibility in  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ ,*  
Phys. Rev. Lett. **70**, 1171–4 (1993).

29. O. Klein, G. Grüner, S.-M. Huang, J. B. Wiley, and R. B. Kaner,  
*The electrical resistivity of  $K_3C_{60}$ ,*  
Phys. Rev. B (Rapid Comm.) **46**, R11247–9 (1992).
30. O. Klein, K. Holczer, and G. Grüner,  
*Reply to the comments by M.L. Horbach, W. van Saarloos, and D.A. Huse,*  
Phys. Rev. Lett. **67**, 3464 (1991); and H.K. Olsson and R.H. Koch Phys. Rev.  
Lett. **68**, 2406 (1992),  
Phys. Rev. Lett. **68**, 2407 (1992).
31. O. Klein, K. Holczer, G. Grüner, and G. A. Emelchenko,  
*Conductivity coherence peak in  $YBa_2Cu_3O_7$ ,*  
J. de Phys. I (Paris) **2**, 517–22 (1992).
32. J. D. Thomson, G. Sparn, K. Holczer, O. Klein, G. Grüner, D. F., R. B. Kaner,  
and R. L. Whetten,  
*“Characterisation of superconducting fullerenes”, in Oxide Superconducti-*  
*vity,*  
Plenum, New-York, 1992.
33. K. Holczer, O. Klein, G. Grüner, S.-M. Huang, K.-J. Fu, R. L. Whetten, and  
F. Diederich,  
*Alkali-Fulleride superconductors: synthesis, composition and diamagnetic*  
*shielding,*  
Science **252**, 1154–7 (1991).
34. K. Holczer, O. Klein, G. Grüner, J. D. Thompson, F. Diederich, and R. L.  
Whetten,  
*Critical Magnetic Fields in the Superconducting State of  $K_3C_{60}$ ,*  
Phys. Rev. Lett. **67**, 271–4 (1991).
35. K. Holczer, O. Klein, and G. Grüner,  
*Observation of the conductivity coherence peak in superconducting Pb,*  
Solid State Comm. **78**, 875–7 (1991).
36. O. Klein, K. Holczer, G. Grüner, J. J. Chang, and F. Wudl,  
*The electrodynamics of the superconducting state of  $\kappa-(BEDT-TTF)_2Cu(NCS)_2$ ,*  
Phys. Rev. Lett. **66**, 655–8 (1991).
37. K. Holczer, D. Quinlivan, O. Klein, and G. Grüner,  
*Temperature dependence and anisotropy of the penetration depth in  $\kappa-(BEDT-$*   
*TTF) $_2Cu(NCS)_2$ ,*  
Solid State Comm. **76**, 499–501 (1990).
38. O. Klein, K. Holczer, G. Grüner, J. J. Chang, D. Scalapino, and F. Wudl,  
*Electrodynamics of the superconducting state of  $\kappa-(BEDT-TTF)_2Cu(NCS)_2$ ,*  
Synthetic Metals **41–43**, 2063–70 (1990).
39. K. Holczer, O. Klein, G. Grüner, Y. Yamachi, and F. Wudl,  
*“The Electrodynamics of the superconducting state of  $\kappa-(BEDT-TTF)_2Cu(NCS)_2$ ”,*  
*in Organic Superconductors,*  
Plenum, New-York, 1991.



# Préambule

A ce jour, j'ai abordé trois thèmes de recherche relativement distincts au cours de ma carrière scientifique. Cela a débuté en 1988 par une thèse à l'Université de Californie à Los Angeles portant sur les propriétés électrodynamiques des supraconducteurs. Mon parcours s'est ensuite poursuivi en 1993 par un stage postdoctoral au Massachusetts Institute of Technology dans le domaine des transistors à un électron. Depuis 1996, je mène au CEA un projet de détection mécanique de la résonance magnétique. Cette thématique fait actuellement l'objet d'une compétition forcée sur le plan international, dont le dessein est de détecter la résonance d'un spin individuel. Le contenu scientifique de ce mémoire d'habilitation traite uniquement de ma contribution sur ce dernier sujet.

Après une première partie consacrée à mon parcours scientifique, ce mémoire comporte trois chapitres sur la microscopie à résonance magnétique. Un premier chapitre rappelant les principes de la méthode, un deuxième chapitre appliqué aux systèmes paramagnétiques et un troisième chapitre portant sur les couches minces ferromagnétiques. Enfin l'évolution de ces travaux vers des multicouches conductrices nous amène à considérer le terme de transport dans la relaxation. Cette nouvelle physique sera évoquée dans un paragraphe de perspective.

L'esprit de ce manuscrit est de faire une synthèse et une analyse critique du projet scientifique en l'illustrant par des données expérimentales originales. J'ai joint à l'appendice cinq articles afférents à ces travaux. Ils offrent une information complémentaire qui est souvent nécessaire à la compréhension des thèmes abordés.



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Parcours scientifique</b>	<b>17</b>
1.1	Facteurs de cohérence . . . . .	17
1.2	Transistor à un électron . . . . .	18
1.3	Microscopie à force magnétique . . . . .	19
1.4	Responsabilité pédagogique . . . . .	21
<b>2</b>	<b>Principes</b>	<b>23</b>
2.1	Introduction . . . . .	23
2.1.1	Historique . . . . .	23
2.1.2	Faits marquants . . . . .	24
2.1.3	Les acteurs . . . . .	24
2.2	Principes de la détection mécanique de la résonance magnétique . . . . .	25
2.2.1	Le couplage sonde-échantillon . . . . .	25
2.2.2	Déformation mécanique . . . . .	26
2.2.3	Optimisation du signal, loi d'échelle . . . . .	27
2.2.4	Mesure des propriétés mécaniques du levier . . . . .	29
2.3	Étude comparée de la sensibilité : levier vs. micro-bobine . . . . .	38
<b>3</b>	<b>Étude de systèmes paramagnétiques</b>	<b>43</b>
3.1	Introduction . . . . .	43
3.2	Dispositif expérimental . . . . .	43
3.3	Mesure de la relaxation . . . . .	45
3.4	Conclusion . . . . .	46
<b>4</b>	<b>Étude des systèmes ferromagnétiques</b>	<b>47</b>
4.1	Introduction . . . . .	47
4.2	Spectre de résonance en aimantation perpendiculaire . . . . .	50
4.3	Mesures de relaxation ferromagnétique . . . . .	54
4.3.1	Dépendance en fréquence de la largeur de raie . . . . .	55
4.3.2	Modulation haute fréquence . . . . .	57
4.3.3	Mesure quantitative de $\Delta M_z(\ell)$ . . . . .	61
<b>5</b>	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>65</b>
5.1	Microscope cryogénique . . . . .	65
5.2	Injection de spins . . . . .	65
5.3	Conclusion . . . . .	68





# Chapitre 1

## Parcours scientifique

Ce chapitre reprend en détail mon parcours scientifique en suivant un ordre chronologique. Je présenterai d'abord mon sujet de thèse, suivi de mon stage postdoctoral. Enfin, une section sera dédiée à la microscopie à force magnétique. Cette thématique a servi de base au développement de la microscopie à résonance magnétique.

### 1.1 Facteurs de cohérence

Le pic de Hebel et Slichter [24] observé en Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) est reconnu comme la preuve expérimentale de l'existence des paires de Cooper dans l'état supraconducteur. Ce pic est une illustration dramatique des effets de cohérence où le comportement qualitatif de la fonction réponse à une excitation extérieure reflète la symétrie du couplage entre les électrons [72]. Les facteurs de cohérence sont un concept général à toute brisure de symétrie du bain électronique, que ce soit pour la supraconductivité, les ondes de densité de charge ou les ondes de densité de spin. Pour ma thèse, j'ai mesuré les propriétés électrodynamiques des supraconducteurs dans la bande hyperfréquence de 10 à 100GHz. Dans les supraconducteurs conventionnels, un pic apparaît dans la dépendance en température de la conductivité optique lorsque l'énergie des photons est inférieure au gap. En développant une nouvelle technique expérimentale, j'ai mesuré pour la première fois le pic de cohérence de la conductivité qui est analogue à celui attendu en RMN. L'explication en est simple : comme tout tenseur impair par inversion temporelle (la symétrie de l'état BCS), l'absorption micro-onde bénéficie d'un effet de cohérence constructive qui augmente l'absorption apparente en-dessous de  $T_c$ , en compétition directe avec la diminution du nombre de quasiparticules lorsque la température diminue. Ceci donne lieu à un pic.

Ces principes ont été ensuite appliqués à l'étude des supraconducteurs conventionnels : le Nb et le Pb [41]. Nous avons montré que la forme et la hauteur du pic révèlent une information fine sur la nature du couplage responsable de la transition de phase. Pour en savoir plus, le lecteur est invité à lire l'article en référence [41] résumant mes travaux à ce sujet. Ensuite j'ai développé un modèle théorique pour les composés anisotropes [37] afin d'anticiper mes observations sur les supraconducteurs organiques aux propriétés de transport quasi-bi-dimensionnelles dans l'état normal. Puis je les ai mesurées dans différentes orientations cristallographiques afin de voir l'influence de l'anisotropie sur la supraconductivité [38]. Ensuite, je me suis intéressé aux fullérènes dopés par des alcalins, une nouvelle classe de composés organiques avec des  $T_c$ s élevées. Enfin j'ai étudié les

hauts  $T_c$ s [39] : un travail plus difficile car nécessitant un contrôle rigoureux des qualités de l'échantillon (stoechiométrie, maillage etc...) Au cours de cette dernière étude, j'ai été amené à faire des mesures de RMN dans l'équipe d'Henri Alloul à Orsay [3]. Notre but était de comprendre la différence existante entre la fonction réponse imputable au spin et celle due à la charge des quasiparticules dans ces nouveaux matériaux. Ma thèse a duré approximativement trois ans au terme desquels je suis parti rejoindre l'équipe de Marc Kastner au MIT pour travailler sur le transistor à un électron.

## 1.2 Transistor à un électron

Le transistor à un électron consiste à isoler une petite île conductrice entre deux contacts ohmiques et la relier de part et d'autre par une barrière tunnel. L'échantillon est habituellement fabriqué à partir d'un gaz bi-dimensionnel situé à l'interface d'une hétérojonction à dopage modulé de GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>. La boîte, dont les dimensions sont nanométriques, est modelée par répulsion électrostatique en utilisant des électrodes de surface polarisées négativement. Dans ce cas, la densité électronique et la taille de la boîte sont suffisamment faibles, pour qu'à très basses températures ( $\approx 20$ mK), la séparation entre les niveaux d'énergie du spectre d'excitation de l'île soit supérieure à l'élargissement thermique. L'information spectroscopique est extraite des mesures de transport. Une tension de grille ajuste le potentiel électrochimique de cet atome artificiel à  $N$ -électrons par rapport à celui du niveau de Fermi des contacts. Lorsque les deux niveaux sont alignés, la boîte se couple aux réservoirs et elle devient conductrice par effet tunnel résonant. Le dispositif fonctionne dans le régime de blocage de Coulomb. Les capacités de couplage aux réservoirs extérieurs sont si faibles que la répulsion Coulombienne empêche que plus d'un électron à la fois ne pénètre dans l'île. L'expérience consiste à suivre l'évolution du potentiel électrochimique  $\mu_N$  en fonction d'un champ magnétique extérieur  $B$ . Des changements brutaux de  $\mu_N$  surviennent dès que l'île change de nombre quantique (le dispositif est sensible au retournement d'un seul spin). J'ai utilisé ces sauts pour mesurer les variations du spin et du moment cinétique total de l'île en fonction de  $B$ . Le but de mon travail était de comprendre l'état magnétique d'équilibre dans un système électronique confiné [34].

Nos résultats expérimentaux ont montré l'existence d'un état singulet ( $S = 0$ ) à haut champ [34]. Il survient lorsque tous les électrons occupent le plus bas niveau de Landau. Cet état résulte d'une compétition entre la répulsion Coulombienne, le potentiel de confinement et l'interaction d'échange. Cet état singulet est marqué par une divergence de la susceptibilité magnétique prédite par le modèle de Hartree-Fock. L'interaction d'échange est crucial pour comprendre cet état dans le diagramme de phase. Un modèle semi-classique (sans échange) ne peut pas rendre compte de cette configuration dite compacte. De plus Hartree-Fock (HF) prédit des reconstructions de la densité électronique aux bords de l'île au-delà de l'état saturé. Elles correspondent à une modulation spatiale de la densité électronique. Nous avons aussi observé des transitions de phases à haut champ. Cependant les valeurs de champ prédites pour ces transitions ne correspondent à celles observées expérimentalement. A priori, cette différence n'est pas surprenante étant donné que les corrélations ne sont pas incluses dans le modèle HF. Ces reconstructions étant observé indirectement à travers le transport nous n'avons pas pu aller plus loin dans la compréhension. Pour des champs magnétiques très intenses, les électrons se localisent

et il a été prédit que l'état fondamental est un cristal de Wigner. Dans ce régime, les propriétés de transport ressemblent à celles que l'on obtient pour des ondes de densité de charge où l'état condensé est accroché aux impuretés. Bien que de nombreuses mesures revendiquent l'observation d'un solide, personne n'a pu démontrer le caractère cristallin. Une technique d'imagerie directe de la densité électronique aurait sans doute permis de conclure sur la nature de ces effets.

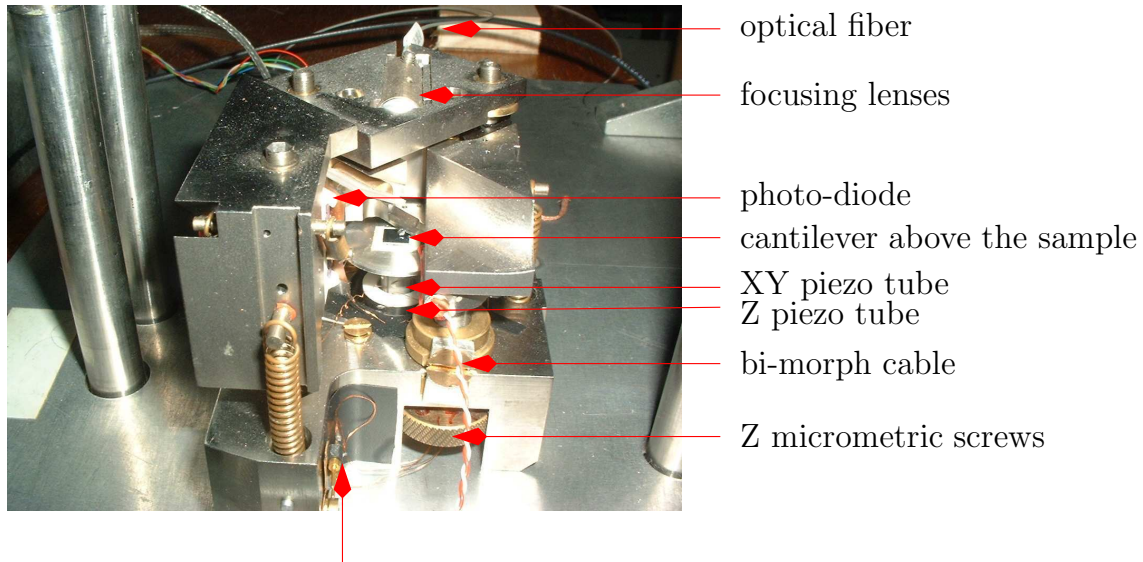
## 1.3 Microscopie à force magnétique

Ainsi dans de nombreuses études de microscopie, l'ambiguïté sur la nature de l'hétérogénéité observée doit être levée par l'apport d'une signature physique ou chimique locale, même si cela s'accompagne d'une perte de résolution spatiale. Les techniques existantes permettant une analyse à l'échelle du nanomètre (sonde tomographique, microscopie électronique) ont certaines contraintes (la préparation des échantillons, le caractère destructif) et il est essentiel de continuer à chercher d'autres moyens innovants pour mesurer ces nano-objets. En particulier, les mesures magnétiques offrent de nombreux avantages : ces mesures peuvent être mises en œuvre sur une large variété de matériaux (isolants, métaux, supraconducteurs...) indépendamment de leur état magnétique (paramagnétique, ferromagnétique...) pourvu qu'un champ magnétique soit appliqué. Cette mesure sans contact est particulièrement bien adaptée à l'étude d'objets enterrés ou encapsulés

Lorsque j'ai rejoint le Laboratoire des Solides Irradiés, notre projet a été de construire un magnétomètre local fonctionnant à température variable et en fort champ magnétique, le but final étant la microscopie à résonance magnétique où l'apport d'une signature spectroscopique permet de déterminer les propriétés physiques et chimiques du nano-objet. Dans ce contexte, la résonance magnétique est une spectroscopie de choix compte tenu de la diversité des approches expérimentales (résonance de spin électronique, résonance ferromagnétique, résonance magnétique nucléaire). L'instrument proposé utilise l'effet de proximité, qui est l'accroissement attendu du signal lorsque la sonde s'approche de la zone à mesurer.

Pour la première étape du projet, un microscope à force magnétique (MFM) original a été développé. Ce microscope est capable de fonctionner dans un champ de 1 Tesla à la température ambiante. Une photographie du dispositif est montrée en FIG.1.1. Le principe de fonctionnement de l'appareil sera décrit en détail dans le chapitre suivant. Le point important est que la taille de la sonde (la particule magnétique à l'extrémité du levier) contrôle la résolution spatiale. Actuellement, elle est de 50nm pour un MFM. Pour faire des mesures quantitatives de l'aimantation, il faut maîtriser deux difficultés inhérentes à la technique. L'une est que le signal mesuré est le gradient spatial de la valeur recherchée. L'autre est que le signal dépend fortement de la séparation entre la pointe et l'échantillon. La relation n'est donc pas univoque et des approximations sont nécessaires pour remonter à  $M$ . Un article récent [57], que l'on trouvera dans l'annexe, aborde en détail cette problématique pour le cas d'échantillons ferromagnétiques saturés.

Avec ce MFM logé entre les pièces polaires d'un électroaimant de 1T, nous avons visualisé pour la première fois les domaines magnétiques d'une couche ultra-mince de FePd(001) sur l'ensemble de son cycle d'hystérésis [42]. Les couches ultra-minces à forte anisotropie magnéto-cristalline perpendiculaire à la surface font l'objet de nombreuses recherches. Ces matériaux pourraient servir de supports pour le stockage magnétique à très



XY piezo-motors (electrical feeds)

FIG. 1.1: **Microscope à force magnétique:** Photographie du dispositif expérimental. On distingue le bloc optique situé dans la partie supérieure. Il mesure la déformation mécanique du micro-levier par un dispositif de déflection laser sur une photo-diode. Le socle en bas contrôle la position de l'échantillon par rapport à la sonde. Il est composé d'un système de tubes piézo-électriques couplés à des moteurs inertiels. Cette combinaison permet de faire des déplacements latéraux de  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  avec une résolution atomique.

haute densité. Les mémoires à bulles magnétiques dans les grenats d'Yttrium (YIG) en sont l'exemple le plus accompli et ont trouvé des applications dans quelques niches particulières. Si le champ d'anisotropie  $H_a = 2K/M_s$  excède le champ démagnétisant  $4\pi M_s$ , alors l'aimantation préfère s'aligner perpendiculairement à la surface soit en pointant vers le haut ou le bas, ces deux états étant dégénérés en champ nul. Dans le cas de films minces la configuration magnétique optimale énergétiquement correspond à un enchevêtrement de ces deux états dégénérés afin de minimiser l'énergie de dépolarisation. La taille d'un domaine dépend alors de l'épaisseur du film, de  $H_a$  et  $M_s$  ainsi que de l'énergie d'une paroi. Il s'avère que dans le cas des YIG, la taille des domaines est rarement inférieure au micron. Dans ce travail nous avons utilisé un film de 20nm d'épaisseur de FePd synthétisé par épitaxie moléculaire par le DRFMC/SP2M dans sa phase  $L_{10}$  [20]. Ce monocristal possède un facteur de qualité  $Q = K/2\pi M_s^2$  supérieur à 2.2 ce qui conduit à des domaines de l'ordre de 80nm en champ nul. Des domaines de si petites tailles ne sont pas observables par les méthodes classiques de microscopie optique et seul le MFM possède une résolution spatiale suffisante pour visualiser ce type de structure. Nous avons montré que l'accroissement de  $M$  quand  $B$  augmente est dû à un raccourcissement des domaines minoritaires le long de leur axe. Concomitant avec cette réduction de longueur, la largeur des domaines minoritaires se contracte aussi en accord avec le modèle de Kooy et Enz [43]. Nous avons aussi observé un large désordre dans les processus de propagations des parois magnétiques.

Une extension de ce projet a été le couplage des mesures MFM avec celles de transport pour mesurer la résistance des parois [16]. Les parois magnétiques constituent des régions

de tailles nanométriques où la direction de l'aimantation évolue continûment. Ces petits volumes constituent des défauts magnétiques intrinsèques dans lesquels la résistivité électrique doit changer. La controverse sur la résistance électrique de ces hétérogénéités magnétiques existe depuis le début des années 70. De fait, l'effet attendu est très faible, et est resté longtemps hors de portée de la mesure. Afin de quantifier cet effet, nous avons mesuré une nanostructure de FePd préparée par lithographie où 8 parois magnétiques ont été piégées entre les contacts destinés à la mesure de la chute de tension, lorsqu'un courant est injecté dans la ligne.

Un champ magnétique est alors appliqué, qui entraîne la disparition, un à un, des domaines magnétiques. La variation de résistance obtenue présente des sauts discrets, interprétés en termes de disparition des parois entre les contacts. Ces mesures apportent une quantification claire de la résistance induite par les parois de domaines magnétiques. L'effet mesuré ramené au volume des parois correspond à une augmentation d'environ 10% de la résistance au sein de ces hétérogénéités magnétiques. L'effet est dû à l'inertie des spins électroniques qui ont du mal à suivre l'aimantation locale. La composante du spin non alignée provoque un accroissement de leur probabilité de diffusion qui se traduit par une augmentation locale de la résistance. Outre l'intérêt lié à la compréhension des propriétés de transport électronique dépendant du spin, la mesure de la conductivité électrique permet de suivre le processus de retournement de l'aimantation par un champ extérieur. La résistance des parois est, pour l'heure, trop petite pour être appliquée à la réalisation d'un capteur de champ. Cependant, il est prédit que cet effet résistif doit grandir quand les dimensions latérales des structures sont réduites à l'échelle atomique.

## 1.4 Responsabilité pédagogique

Au cours de ces années, j'ai participé à la formation de nombreux étudiants en stage ou en thèse dans le cadre de mes recherches. Pendant mon séjour postdoctoral au MIT, j'ai dirigé le stage de fin d'étude de David Tang sur les effets d'échange dans les boîtes quantiques, ainsi qu'une partie de la thèse de David Goldhaber-Gordon sur la spectroscopie des atomes artificiels. J'ai aussi participé à la thèse de David Abusch-Magder sur les systèmes électroniques confinés en Si. Pendant mon séjour au LSI, j'ai co-supervisé avec Hubert Pascard la thèse d'Alexandra Charaya sur les nanotubes de carbone remplis par des métaux magnétiques. Enfin, depuis que je suis au SPEC, j'ai encadré le stage de DEA de Romain Danneau portant sur l'étude du transport dans une nanostructure en FePd, puis la thèse de Vincent Charbois sur la résonance ferromagnétique dans un disque de YIG. Actuellement, je suis responsable de deux nouvelles thèses : celle de Grégoire de Loubens sur la RFM dans des multicouches magnétiques conductrices et celle d'Antoine Vanhaverbeke sur les mesures de MFM couplées à des mesures de transport.

Outre l'encadrement de stagiaires et thésards mon expérience pédagogique est double :

- J'ai occupé le poste de "Teaching Assistant" pendant mes cinq années de thèse à UCLA. Mon travail était d'encadrer les travaux pratiques de premier et deuxième cycle au sein du département de physique.
- Depuis 1998, je suis enseignant à la vacation dans le département de physique à l'École Polytechnique. J'ai partiellement encadré les TREX et les MODEX où j'ai repris l'expérience de Résonance Magnétique Nucléaire montée par mes prédécesseurs.

Mon intention pédagogique est d'inculquer aux élèves un esprit d'indépendance et d'au-

tonomie dans leur appréhension de la physique expérimentale. Je crois que cette maturité vient d'une démystification de la partie technique et elle s'acquière en insufflant un esprit de bricolage et de bidouillage dans le montage d'une expérience. L'exemple sur lequel je me suis appuyé jusqu'à ce jour est celui de la RMN. Dans le cadre des travaux pratiques, l'emploi d'un spectromètre éclaté bas champ, fait de composants électroniques relativement standards, a bien des vertus pédagogiques. On leur montre qu'un tel outil peut avoir des applications originales mêmes industrielles sans recourir à un spectromètre commercial, très onéreux, développé spécifiquement pour la haute résolution.

# Chapitre 2

## Principes

### 2.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présenterons les principes de la détection mécanique. Après un bref rappel historique, nous analyserons le mécanisme de couplage entre la sonde et le signal de résonance magnétique. Nous nous intéresserons ensuite à la sensibilité de cette nouvelle technique et la comparerons avec celle d'une détection classique du signal d'induction.

#### 2.1.1 Historique

Le prix Nobel de médecine a été attribué cette année aux deux physiciens Paul Lauterbur [46] et Peter Mansfield [52] pour leur découverte en 1973 de l'imagerie par résonance magnétique (IRM). Reconnaître une utilité à placer l'échantillon dans un champ inhomogène est un concept assez contre-intuitif surtout pour un spectroscopiste. D'ailleurs une très belle expérience de résonance a longtemps été perçue comme une simple prouesse technique faute d'avoir su exploiter cet intérêt du codage spatial. Il s'agit de la première détection mécanique de la résonance magnétique nucléaire (RMN) obtenue par D.F. Evans en 1955 [18]. A l'époque, Evans cherchait de nouveaux moyens pour mesurer la composante statique de la susceptibilité nucléaire. Inspiré par la balance de Faraday, il propose de placer l'échantillon dans un champ inhomogène afin d'y exercer une force dessus. Il note que la sensibilité de son dispositif est comparable à celle d'une détection inductive. Dans son commentaire de conclusion, il écrit cependant, que sa technique n'aura sans doute aucune utilité pratique : l'emploi d'un champ inhomogène étant nécessaire, la résolution spectrale est intrinsèquement mauvaise. Effectivement, peu de travaux s'en suivront pendant plusieurs dizaines d'année. On note en 1961, une mention faite par A. Abragam dans l'introduction de son fameux livre [1], puis en 1967, une tentative par Alzetta *et al.* [5, 4] de détecter mécaniquement le signal de résonance paramagnétique électronique du diphenylpicrylhydrazil (DPPH). Dans ce cas, l'échantillon est placé dans un champ homogène et le couple est mesuré.

Ces expériences originales sur la détection mécanique furent remises au goût du jour par J.A. Sidles [74] en 1991 aux vues des progrès obtenus à la fois en IRM mais aussi en microscopie à force atomique (AFM). Sidles souligne l'avantage d'utiliser un détecteur proportionnel au gradient de champ, permettant d'augmenter fortement la résolution spatiale sans détérioration de la sensibilité, en opérant dans un champ très inhomogène.



Sidles propose d'utiliser un micro-levier identique à ceux utilisés dans un AFM pour faire de l'imagerie avec une résolution spatiale atomique. Cette nouvelle technique est appelée Microscopie à Résonance Magnétique détectée Mécaniquement (MRFM). La validation expérimentale de ces idées remonte à 1992 pour la détection de la Résonance Paramagnétique Électronique (RPE) [67], à 1994 pour la Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) [68] et à 1996 pour la Résonance Ferromagnétique (RFM) [92].

### 2.1.2 Faits marquants

Plusieurs progrès significatifs suivirent ces premières démonstrations de faisabilité. Des études consécutives montrèrent la remarquable amélioration de la résolution spatiale en imagerie RPE [94, 23] et RMN [93, 70]. La détection du couple dans un champ homogène fut répétée avec un AFM [6]. De nombreuses études se penchèrent sur l'augmentation attendue de la sensibilité pour des leviers de plus en plus souples à basses températures [86, 87, 84, 78, 51]. Pour des raisons pratiques, les premières expériences utilisèrent une configuration inversée avec l'échantillon collé sur le levier. Il fut vite démontré par la suite qu'une cartographie du champ de force peut aussi être obtenue en plaçant la source du gradient de champ sur le levier [85, 80]. En 1996, Wago *et al.* [86] montrèrent une séquence de mesure permettant d'accéder au temps de relaxation spin-réseau. L'exemple choisi fut celui du  $^{19}\text{F}$  dans le fluorure de calcium [86]. La même méthode fut utilisée pour obtenir le  $T_1$  du proton dans le sulfate d'ammonium à température ambiante et à pression atmosphérique [69, 82], *i.e.* des conditions extérieures compatibles avec des échantillons biologiques. Tous ces travaux contribuent à une meilleure compréhension des limites physiques d'une telle technique de détection. Mais l'attrait principal aux yeux de la communauté scientifique, est l'espoir de mesurer un jour le signal de résonance avec la sensibilité du spin unique. Le record de sensibilité à ce jour est équivalent à  $2\mu_B$  dans un bande passante de 0.1Hz [51]. Ce résultat a été obtenu cette année par le groupe d'IBM [51] en opérant un MRFM à 200mK dans un gradient de champ de 2G/nm. Le signal étudié était celui des centres paramagnétiques  $E'$  d'un cristal de  $\text{SiO}_2$  irradié.

### 2.1.3 Les acteurs

On recense actuellement une quinzaine de groupes qui travaillent sur la mise au point de cette technique. Une liste non exhaustive des acteurs connus est présentée ci-dessous :

Institution	Chercheur	Technique
Université de Nottingham (UK)	Peter Beton	
Université de Bâle (CH)	H.-J. Güntherodt	RPE
Université de Nijmegen (NL)	Arno Kentgens	RMN
Université de Pise (I)	Lorenzo Lenci	RPE
Université de St Andrew (UK)	Graham Smith	

Institution	Chercheur	Technique
IBM Almaden Stanford	Dan Rugar Tom Kenny	RPE, RMN
The University of Washington	John Sidles and Joe Garbini	RPE
Ohio State Caltech	Chris Hammel, Phil Wigen Michael Roukes	FMR, RPE, RMN
The U.S. Army Research Laboratory	Doran Smith	RMN, RPE
University of Texas at Austin	John Markert	RMN
Caltech the NASA Jet Propulsion Laboratory	Dan Weitekamp Tom George	RMN
N.I.S.T.	John Moreland	RPE, FMR
Cornell University	John Marohn	RMN, RPE
University of Southern California	Karoly Holczér	RPE
JEOL, Tokyo	Yohsuke Yoshinari	RPE
KAIST, Seoul	Soonchil Lee	RPE

## 2.2 Principes de la détection mécanique de la résonance magnétique

La détection mécanique de la résonance magnétique s'inspire des techniques de microscopie en champ proche.

### 2.2.1 Le couplage sonde-échantillon

La sonde, un aimant permanent de taille microscopique, est placée à l'extrémité libre d'un micro-levier très souple. L'ensemble est ensuite plongé dans le champ de fuite de l'échantillon à mesurer. Le couplage est assuré par le champ dipolaire. L'induction magnétique à la position de l'aimant  $B = B_{\text{ext}} + B_M$  résulte respectivement de la superposition d'un champ statique de polarisation produit par une bobine extérieure,  $B_{\text{ext}}$ , et du champ de fuite de l'échantillon,  $B_M$ . La charge ponctuelle résultante sur le levier crée alors une déformation élastique de la poutre qui est détectée par un système optique très sensible. Pour une aimantation  $\mathcal{M}$  uniforme dans le volume de la sonde (*e.g.* si le champ appliqué est supérieur au champ de saturation de l'aimant permanent), alors la force et le couple appliquées à l'extrémité libre du levier prennent respectivement la forme :

$$\mathbf{F} = \oint_{S_{\text{sonde}}} \mathbf{B} (\mathcal{M} \cdot \mathbf{n}) dS, \quad (2.1a)$$

$$\mathbf{N} = \int_{V_{\text{sonde}}} (\mathcal{M} \times \mathbf{B}) dV, \quad (2.1b)$$

avec  $V_{\text{sonde}}$  le volume de la sonde,  $S_{\text{sonde}}$  sa surface de vecteur normal  $\mathbf{n}$ . La quantité mesurée est généralement le changement de déformation produit lorsqu'une résonance magnétique est électromagnétiquement excitée dans l'échantillon. Il faut noter cependant, que la fréquence de Larmor  $\omega_0$  est toujours très supérieure aux modes principaux de flexion du levier. La masse inertielle de la sonde est alors très grande à cette fréquence et le levier ne se couple pas à la dynamique de la composante transverse. La déformation mécanique n'est attribuable qu'à la décroissance conjuguée de la composante longitudinale (définie comme celle le long de l'axe de précession)  $M_s - M_z$ , où  $M_s$  est l'aimantation statique à l'équilibre thermique.

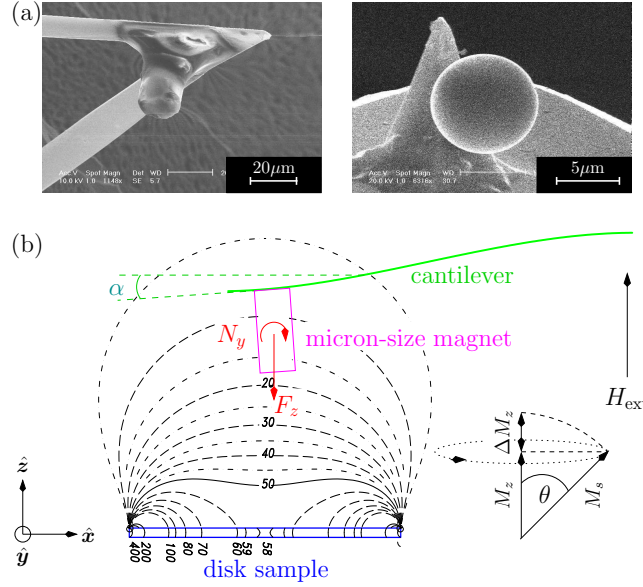


FIG. 2.1: **Détection mécanique de la RFM:** Le champ de fuite de l'échantillon crée une force  $F_z$  et un couple  $N_y$  sur une particule magnétique collée à l'extrémité d'un micro-levier (cylindre ou sphère) (a). La mesure optique de l'angle de flexion  $\alpha$  (volontairement exagéré sur cette figure : sa valeur caractéristique est de l'ordre de  $10^{-6}$  rad) permet de caractériser les modifications du champ de fuite induites par l'excitation de la résonance magnétique.

## 2.2.2 Déformation mécanique

Dans notre configuration standard, le degré de liberté du levier est orienté parallèlement au champ extérieur, défini comme la direction  $z$ . Si on appelle  $x$ , l'axe du levier, alors  $F_z$  et  $N_y$  sont les deux composantes de la force et du couple qui produisent une déformation dans la direction  $z$ . Avec un système de déflexion laser, la quantité mesurée est l'angle d'incidence  $\alpha$  à l'extrémité du levier. Pour un levier à un seul bras, il est possible de montrer que la charge est reliée à  $\alpha$  par la relation :

$$\alpha = \frac{l^2}{2EI} F_z + \frac{l}{3EI} N_y, \quad (2.2)$$

où  $E$  et  $I$  sont respectivement le module de Young et le moment quadratique du levier.

Il est avantageux dans la pratique, de bénéficier de simplifications par symétrie dans le couplage pointe échantillon. Toutes les mesures reportées dans ce mémoire ont été obtenues sur des configurations qui préservent la symétrie axiale. Sur l'axe de symétrie, la composante selon  $x$  du champ dipolaire ( $\mathbf{B}_{M_z} \cdot \hat{\mathbf{x}}$ ) s'annule et donc ne contribue pas au couple ( $N_y = 0$ ). Il existe deux géométries de sonde possibles qui bénéficient de cet avantage : les cylindres ou les sphères. Ces deux cas seront analysés dans ce qui suit.

### 2.2.2.1 Sonde de symétrie axiale

Considérons une sonde cylindrique de rayon  $r_s$  et de hauteur  $h_s$ , saturée selon son axe par un champ extérieur homogène. Comme la sonde est saturée, l'intégrale de la force sur le volume de la sonde est nulle et la force s'exprime en fonction de la différence entre les

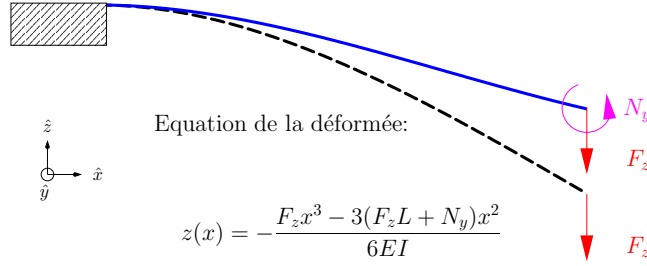


FIG. 2.2: **Déformation sous champ d'un levier à pointe aimantée:** Analyse de la déformée d'une poutre simple encastrée sous l'action conjointe d'une force  $F_z$  et d'un couple  $N_y$  ponctuels à l'extrémité.

valeurs du champ de fuite à la base et au sommet du cylindre :

$$F_z = \mathcal{M} \left( \int_{S_{\text{base}}} dS B_z - \int_{S_{\text{sommet}}} dS B_z \right). \quad (2.3)$$

Pour  $r_s$  très petit, la composante  $B_z$  du champ de fuite de l'échantillon peut être considérée homogène sur chacune des faces du cylindre alors cette expression se réduit simplement à :

$$F_z = \pi r_s^2 \mathcal{M} \{ B_z(\ell) - B_z(\ell + h_s) \}, \quad (2.4)$$

où nous avons introduit la séparation  $\ell$  entre la sonde et l'échantillon qui crée la différence de champ  $B_z(\ell) - B_z(\ell + h_s)$  à travers la pointe cylindrique. On voit donc que dans le cas d'une sonde cylindrique saturée, le couplage avec le champ de fuite de l'échantillon ne fait intervenir que les charges magnétiques effectives accumulées aux deux extrémités du cylindre. Le cas limite du cylindre infiniment long constitue une *sonde de champ magnétique*.

A l'opposé, la sphère magnétique de rayon  $r_s$  et d'aimantation à saturation  $\mathcal{M}$  est une géométrie équivalente à celui d'un moment magnétique ponctuel [28]

$$\mu = \frac{4}{3} \pi r_s^3 \mathcal{M}, \quad (2.5)$$

placé au centre. Le couplage avec une sonde sphérique est donc analogue à celui d'un couplage avec un dipôle individuel. La sphère est donc le cas limite opposé du cylindre infini, au sens où elle constitue une *sonde de gradient de champ magnétique* :

$$F_z = \frac{4\pi}{3} r_s^3 \mathcal{M} \frac{\partial B_z}{\partial z}(\ell + r_s). \quad (2.6)$$

### 2.2.3 Optimisation du signal, loi d'échelle

Dans les expressions précédentes, l'amplitude du signal dépend fortement à la fois de la taille de la sonde, mais aussi de sa séparation  $\ell$  avec l'échantillon. Il est légitime alors de se poser la question sur l'existence éventuelle d'un optimum pour la sensibilité. Comme pour une détection inductive, la réponse est affirmative et il existe un analogue au concept du facteur de remplissage.

Prenons l'exemple d'un échantillon cylindrique, de rayon et hauteur respectives  $r_e$  et  $h_e$ , en interaction avec une sonde sphérique de rayon  $r_s$ . On souligne que notre but

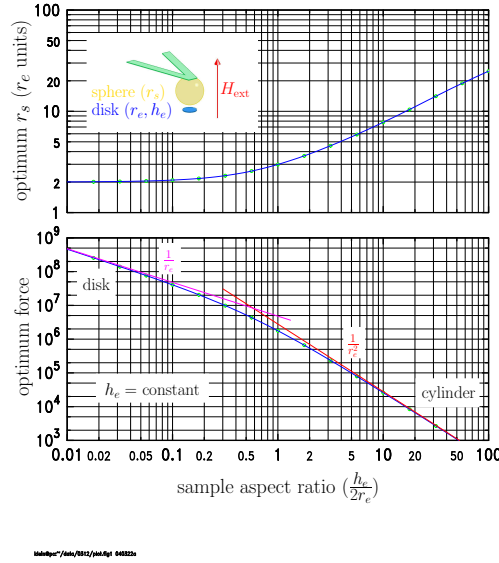


FIG. 2.3: **Loï d'échelle:** Étude de l'interaction entre un échantillon cylindrique de rayon  $r_e$  et de hauteur  $h_e$  couplé à une sonde sphérique de rayon  $r_s$ . Il existe un rayon  $r_s$  optimum qui maximise la force de couplage (équivalent au facteur de remplissage). La figure (a) montre la variation de ce rayon optimum en fonction du rapport d'aspect de l'échantillon. La figure (b) montre la loi d'échelle suivie par la force maximum lorsque  $r_e$  diminue à  $h_e$  constant. Pour des rapports d'aspect  $< 1$  le signal varie en  $1/r_e$  alors que le volume lui décroît en  $1/r_e^2$ .

ici est d'optimiser la sensibilité, ce qui est différent d'une optimisation de la résolution spatiale. Pour simplifier la discussion, on présume que l'ensemble des spins de l'échantillon résonne uniformément. C'est le cas par exemple d'un système ferromagnétique uniforme ou d'un échantillon petit par rapport à la sonde (gradient de champ faible). La sonde sphérique se comportant comme un dipôle ponctuel, elle sonde le gradient de champ localement en son centre. On sait que le gradient au-dessus d'un cylindre magnétique a un maximum situé sur son axe à une hauteur déterminée uniquement par le rapport d'aspect  $r_e/h_e$ . Toutes choses étant égales, le signal augmente lorsque  $r_s$  augmente puisque la masse magnétique dans l'EQU.2.5 s'accroît. Cependant cette augmentation ne peut se faire indéfiniment sans modification de la séparation  $s$  entre le centre de la sphère et la surface supérieure de l'échantillon. Dès que la sphère touche la surface du cylindre, toute augmentation ultérieure requière que  $s = r_s$ . Or on devine que lorsque  $r_s$  tend vers l'infini le couplage tend vers zéro. L'interaction d'un cylindre avec un plan infini est strictement nulle : les lignes de champ positives sont complètement compensées par celles négatives qui se bouclent à la périphérie. En conclusion, il existe donc un optimum. Ce dernier peut être calculé analytiquement. La FIG.2.3 montre la valeur de  $r_s$  optimisé pour différent rapport d'aspect de l'échantillon (dans cette gamme la séparation optimum est toujours  $s = r_s$ ). On voit que dans le cas des structures planes (rapport d'aspect  $< 1$ ), la taille de sonde optimum est celle d'une sphère qui est deux fois plus grosse que le diamètre de l'échantillon.

Une question corollaire alors est la loi d'échelle suivie par le signal quand on change la taille de l'échantillon. Un exemple utile pour la suite est la diminution attendue de la force quand  $r_e$  diminue pour un échantillon ferromagnétique. Si l'on utilise une sonde sphérique

et que la taille de la sonde reste optimisée selon la fonction décrite sur la FIG.2.3a alors le signal décroît en  $1/r_e$  pour des rapports d'aspects inférieurs à 1 sachant que le nombre de spin décroît lui comme  $1/r_e^2$  (ce qui serait la loi d'échelle suivie par une bobine). Ce résultat montre que cette technique est particulièrement adaptée à la mesure de petits objet ayant un faible rapport d'aspect. On reviendra sur ce point plus bas.

Il est important de conclure ce chapitre en notant que notre souci jusque là a été l'optimisation de la sensibilité. Cet objectif est en principe disjoint d'une optimisation de la résolution spatiale, où  $\ell$  et  $r_s$  doivent être les plus faibles possibles. Dans le cas des systèmes paramagnétiques la réponse est encore plus subtile et il est possible en principe d'atteindre la résolution atomique avec une sonde de taille finie [32].

### 2.2.4 Mesure des propriétés mécaniques du levier

Les propriétés mécaniques de la sonde sont entièrement caractérisées par trois paramètres : sa fréquence de résonance  $f_c = \omega_c/2\pi$ , son facteur de qualité  $Q$  et sa constante de raideur  $k$ .

Une calibration de ces propriétés est absolument nécessaire [27]. On ne peut pas se baser uniquement sur des estimations numériques [12, 58] fondées sur la seule connaissance des dimensions du levier car celles-ci ne sont connues que de manière approximative. C'est notamment le cas de l'épaisseur  $t$  du levier. Sachant que la raideur  $k$  est proportionnelle à  $t^3$ , une petite erreur sur l'épaisseur peut entraîner une très mauvaise estimation de la constante de raideur.

Toutes ces propriétés vont dépendre des paramètres extérieurs : la température  $T$  du levier, le champ magnétique, la pression  $P$  de l'enceinte sous vide, l'intensité du faisceau laser etc.. Concernant la température du levier, il nous faut considérer deux sources de chauffage : celle due à la puissance du faisceau laser et celle due au contact thermique avec l'ensemble du dispositif expérimental. La température du montage étant stabilisée à  $\pm 0,02$  °C près, il s'agit en principe d'un paramètre fixé tout au long de l'expérience. De même, l'intensité du laser est stabilisée avec une précision de l'ordre de quelques dizaines de parties par million (ppm). On peut donc négliger les fluctuations de chauffage sur les propriétés du levier et considérer sa température constante tout au long des mesures. Il en est de même pour la pression dans l'enceinte à vide. Par contre il est important de caractériser l'influence du champ magnétique sur les propriétés de la sonde car il s'agit d'un paramètre variable. Cette influence résulte de l'interaction du cylindre magnétique avec le champ extérieur qui, rappelons-le, est la superposition du champ statique homogène  $B_{\text{ext}}$  parallèle à l'axe de la pointe et du champ de fuite de l'échantillon  $B_M$ . Les propriétés mécaniques de la sonde sont donc susceptibles de varier si on modifie  $B_{\text{ext}}$  ou si on change la position relative entre la sonde et l'échantillon.

Nous allons présenter deux mesures distinctes permettant de caractériser les propriétés mécaniques de la sonde. Tout d'abord par une mesure du bruit thermomécanique du levier, nous allons, pour un champ extérieur donné, déterminer à la fois sa fréquence de résonance  $f_c$ , son facteur de qualité  $Q$  et sa constante de raideur  $k$ . La valeur obtenue sera comparée avec une mesure directe du déplacement induit par un gradient de champ calibré. Ceci nous renseignera sur la précision avec laquelle nous serons en mesure de caractériser la force appliquée au levier, connaissant son amplitude de vibration. Enfin la dépendance en champ de  $f_c$  et  $Q$  sera analysée.

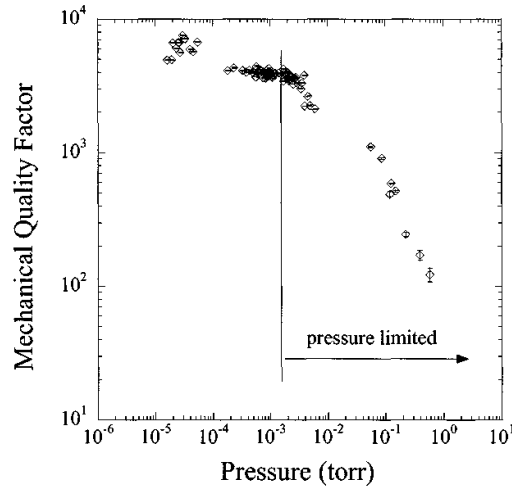


FIG. 2.4: **Dépendance en pression du facteur de qualité** : Facteur de qualité mécanique  $Q$  d'un levier de nitrure de silicium de  $0.51 \mu\text{m}$  d'épaisseur en fonction de la pression. En-dessous de  $10^{-3}\text{torr}$ , le  $Q$  est limité par des mécanismes intrinsèques de dissipation. D'après [91].

#### 2.2.4.1 Bruit thermomécanique

Le levier est en contact thermique avec le reste du dispositif expérimental, que l'on peut considérer comme un thermostat à la température  $T$ . Cette température étant non nulle, un certain nombre de modes élastiques (*phonons*) vont être thermiquement excités dans le levier. Ainsi, en l'absence de toute force extérieure, le levier vibrera avec une amplitude moyenne  $x_{rms} = \sqrt{\langle x^2 \rangle}$  vérifiant le théorème d'équipartition de l'énergie, c'est-à-dire telle que l'énergie cinétique moyenne  $E_c = kx_{rms}^2/2$  associée à ces vibrations thermiquement excitées soit égale à  $k_B T/2$ , avec  $k_B = 1,38 \times 10^{-23}\text{J/K}$  la constante de Boltzmann :

$$x_{rms} = \sqrt{\frac{k_B T}{k}}. \quad (2.7)$$

En réalité, les modes de vibration du levier autres que le fondamental possèdent également une amplitude thermique non nulle. Cependant, leurs constantes de raideur effectives étant beaucoup plus élevées que celle du mode fondamental, il ne contribuent que de façon négligeable à la valeur de  $x_{rms}$ , ce qui justifie le traitement du bruit thermique dans le cadre d'un modèle monomode [27]. L'EQU.2.7 est remarquable puisqu'elle donne directement  $k$  à partir du bruit dans l'espace temporel. La mesure expérimentale est cependant plus délicate car il faut s'affranchir du bruit en  $1/f$  dont le niveau est supérieur à celui du bruit blanc du levier en-dessous de 1kHz.

Dans l'espace des fréquences, ces vibrations sont caractérisées par un spectre de bruit en amplitude de vibration  $S_x(\omega)$  qui, d'après le théorème de Wiener Khintchine, est la

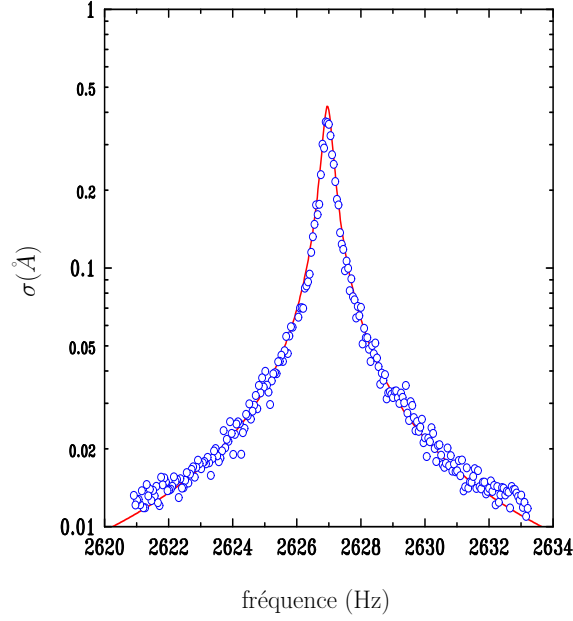


FIG. 2.5: **Spectre de bruit des vibrations thermo-activées du levier sous champ magnétique.** Le levier est celui de la FIG.2.1. La mesure est réalisée sous un vide de  $5 \times 10^{-6}$  Torr, à  $T = 285,00 \pm 0,02$  K pour un champ statique  $H_{\text{ext}} = 5,3$  kOe. Le signal mesuré correspond à l'écart quadratique moyen  $\sigma_x(f)$  de l'amplitude de vibration du levier estimée sur 100 cycles. La courbe en trait plein est un ajustement par la fonction  $S_x(f)$  (EQU.2.10) dont on déduit le facteur de qualité  $Q = 8300 \pm 50$ , la fréquence de résonance  $f_c = 2627,0 \pm 0,1$  Hz et la constante de raideur  $k = 0,28$  N/m du levier.

transformée de Fourier de la fonction de corrélation temporelle des vibrations du levier :

$$S_x(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau \langle x(t)x(t+\tau) \rangle e^{i\omega\tau}. \quad (2.8)$$

On peut voir ces vibrations comme étant induites par une force stochastique  $F(t)$  nulle en moyenne et dont la fonction de corrélation temporelle est un pic de Dirac, c'est-à-dire une force de bruit blanc.

$$S_x(\omega) = |G(\omega)|^2 S_F. \quad (2.9)$$

On montre alors que le spectre de bruit en amplitude de vibration présente un pic centré en  $\omega_c^* = \omega_c \sqrt{1 - 1/2Q^2}$  dont la largeur est reliée au facteur de qualité  $Q$  et dont l'amplitude à  $f_c$  permet de déterminer  $k$ , connaissant  $\omega_c$ ,  $Q$  et  $T$  :

$$S_x(\omega) = \frac{4k_B T k}{\omega_c Q} \left( \frac{\omega_c^2}{k} \right)^2 \frac{1}{(\omega_c^2 - \omega^2)^2 + \left( \frac{\omega_c \omega}{Q} \right)^2}. \quad (2.10)$$

Le résultat d'une mesure de  $S_x(\omega)$  pour un champ statique  $H_{\text{ext}} = 5,3$  kOe est représenté sur la FIG.2.5. On a pour cela utilisé un détecteur synchrone dont on a fait varier la fréquence du signal de référence autour de la résonance du levier. La constante de temps du détecteur est fixée à  $\tau_L = 3$  s et chaque point de la FIG.2.5 correspond à



l'écart quadratique moyen du signal de sortie du détecteur synchrone (traduit en amplitude de vibration  $rms$ ), estimé sur 100 cycles. A une fréquence de référence  $\omega$  donnée, on a donc mesuré l'écart quadratique moyen de la composante de Fourier à  $\omega$  de l'amplitude de vibration du levier thermiquement excité  $S_x(\omega)B_{equ}$ , où  $B_{equ}$  est la bande passante équivalente de la mesure. Exactement à la résonance du levier,  $\omega = \omega_c$ , la bande passante équivalente de la mesure est une combinaison de la bande passante du détecteur  $B_{LI} = 1/4\tau_L = 0,08$  Hz et de la bande passante du levier  $B_c = \pi f_c/4Q = 0,25$  Hz :  $B_{equ} = (1/B_{LI} + 1/B_c)^{-1} = 0,06$  Hz. Un ajustement par la fonction  $S_x(\omega)^{1/2}$  donne un facteur de qualité  $Q = 8300 \pm 50$  et une fréquence de résonance  $f_c = \omega_c/2\pi = 2627,0 \pm 0,1$  Hz sous un champ statique  $H_{ext} = 5,3$  kOe. De plus, la connaissance de l'amplitude de  $\sigma_x(\omega = \omega_c)$  à la fréquence de résonance du levier permet d'extraire la constante de raideur  $k$  du levier.

L'ajustement de la FIG.2.5 donne une composante de Fourier à la résonance du levier  $\sigma_x(\omega_c) = 0,42 \pm 0,07$  Å $_{rms}$ , soit un bruit  $S_x^{1/2}(\omega_c) = 1,7 \pm 0,3$  Å/ $\sqrt{\text{Hz}}$ , dont on déduit la constante de raideur du levier,  $k = 0,28 \pm 0,05$  N/m à  $T = 285$  K sous un champ extérieur  $H_{ext} = 5,3$  kOe. Ce dernier résultat illustre le fait que l'interaction entre la pointe magnétique et le champ statique résulte en un raidissement substantiel du levier. La constante de raideur en l'absence du cylindre magnétique n'est que de 0,01 N/m.

Le bruit en amplitude de vibration de  $1,7$  Å/ $\sqrt{\text{Hz}}$  se traduit en un bruit en tension sur le signal  $U_{A-B}$  de  $72$  µV/ $\sqrt{\text{Hz}}$  pour une intensité totale caractéristique  $U_{A+B}=400$  mV. Ce bruit mécanique reste très supérieur au bruit de l'électronique d'amplification (bruit Johnson de la résistance de la boucle de contre-réaction du convertisseur courant-tension des photodiodes, bruit du laser...) qui, à la fréquence de résonance du levier, se situe environ 2 ordres de grandeur plus bas que le bruit thermomécanique. Comme on l'avait fait remarquer au début de ce chapitre, le bruit thermomécanique est donc bien le facteur qui limite la sensibilité d'une détection mécanique.

#### 2.2.4.2 Calibration avec un gradient de champ

L'estimation précédente de la constante de raideur peut être comparée avec une mesure directe du déplacement induit par un gradient de champ calibré.

Une bobine placée 4mm sous le levier génère un champ magnétique  $\mathbf{H}_{mod}$  perpendiculaire au plan de l'échantillon colinéaire au champ statique de l'électroaimant. La bobine excitatrice est caractérisée par une inductance  $L_{mod} = 0,165$  mH et une résistance  $R_{mod} = 1,95$  Ω. La valeur du champ produit par cette bobine est proportionnel à l'intensité  $I$  du courant qui la traverse. Une calibration du champ de fuite de la bobine à l'emplacement de la sonde est obtenue en mesurant expérimentalement le décalage du champ de résonance de l'échantillon en fonction de  $I$  :

$$\frac{H_{mod}(f=0)}{I_{DC}} = 83 \text{ G/A.} \quad (2.11)$$

En connaissant la forme géométrique de la bobine on peut en déduire le gradient de champ local (230G/cm)/A.

Cette procédure permet de déterminer précisément le terme de droite dans l'EQU.2.1a sans faire d'hypothèse quant à la forme géométrique de la pointe. Le résultat étant aussi donné en unité de déformation, la calibration relie directement le signal mécanique à l'inhomogénéité local du champ sans avoir besoin de connaître la constante de raideur  $k$  ou le facteur de qualité  $Q$ .

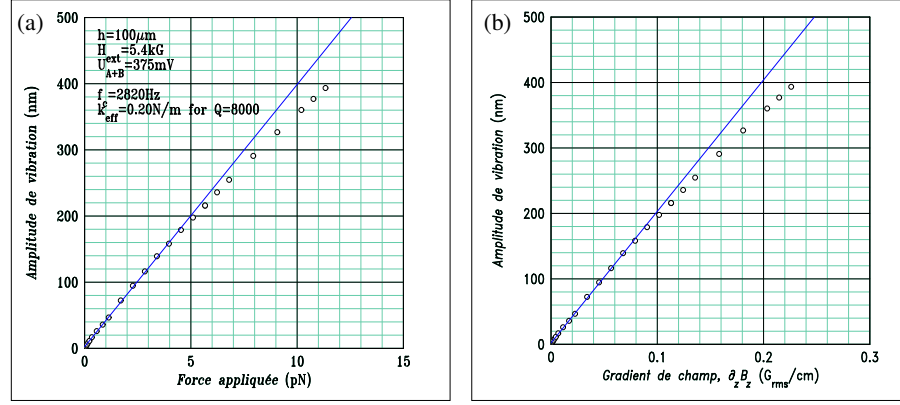


FIG. 2.6: **Calibration de la réponse du levier à une force modulée à  $f_c = 2627$  Hz.** Amplitude de vibration du levier en fonction de la différence de champ  $\Delta B_z$  imposée à travers la sonde. Cette mesure permet d'obtenir la calibration de la réponse du levier. La saturation de la réponse pour  $\Delta H_z \gtrsim 0,001$  G est due à la non linéarité du signal du PSPD pour de grandes amplitudes de vibration.

En reprenant l'exemple du levier cylindrique de la FIG.2.1, une différence de champ  $\Delta H_{\text{ref}} = (1.0 \pm 0.1) \times 10^{-5} \text{G}$  sur la longueur  $h_s = 32 \pm 3 \mu\text{m}$  de la barre, modulée à  $\omega_c/2\pi = 2627 \pm 0.1 \text{Hz}$ , produit un déplacement du levier de  $\zeta_{\text{ref}} = 2.0 \pm 0.1 \text{nm}$  en amplitude.

En supposant que la sonde est un cylindre parfait de rayon  $r_s$  et d'aimantation  $\mathcal{M} = 500 \pm 50 \text{emu/cm}^3$ , on peut utiliser l'ÉQU.2.6 pour en déduire

$$k = Q \pi r_s^2 \mathcal{M} \frac{\Delta H_{\text{ref}}}{\zeta_{\text{ref}}}. \quad (2.12)$$

La FIG.2.6 représente l'amplitude de vibration du levier à  $f_c$  mesurée par un détecteur synchrone pour une force d'amplitude comprise entre 0 et 12 pN. D'un ajustement de la partie linéaire de cette mesure, en supposant un facteur de qualité  $Q = 8300$  comme déterminé au paragraphe précédent, on déduit une constante de raideur  $k = 0,5 \text{ N/m}$ .

Il s'agit d'un résultat différent de celui déduit de la mesures de bruit thermomécanique ( $k = 0,28 \text{ N/m}$ , cf. le paragraphe précédent). L'erreur commise en estimant la force créée sur le levier par le gradient de champ de la bobine de modulation vient de l'approximation cylindrique dans l'ÉQU.2.12. Il semble vraisemblable que l'ÉQU.2.12 ne soit pas parfaitement adaptée à l'estimation du couplage entre le cylindre magnétique et un champ extérieur inhomogène. La validité de l'ÉQU.2.12 est effectivement très sensible à toute imperfection de surface de la pointe, qui induirait une modification de la densité surfacique de charges magnétiques effectives. Par contre, la valeur que nous utilisons pour l'aimantation à saturation de la pointe  $M_{\text{sonde}}$  (déterminée à partir de courbes d'aimantation mesurées au SQUID sur une pointe plus longue) permet d'expliquer *quantitativement* la position en champ des modes magnétostatiques.

### 2.2.4.3 Dépendance en champ de la constante de raideur

Nous venons de montrer que l'application d'un champ magnétique  $H_{\text{ext}}$  le long de l'axe de la sonde induisait un raidissement du levier. La constante de raideur  $k$  étant liée à

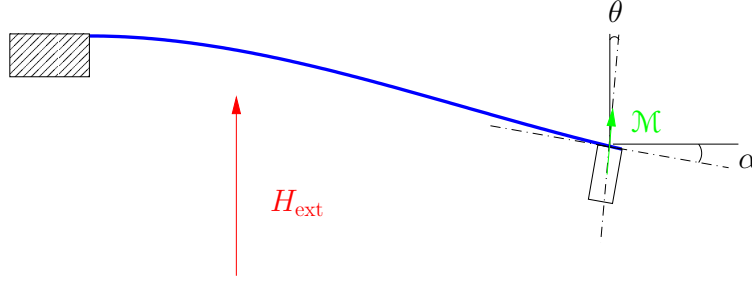


FIG. 2.7: **Modélisation de l'interaction de la sonde avec le champ magnétique  $H_{\text{ext}}$** :  $\alpha$  est l'angle de flexion du levier à son extrémité.  $\theta$  est l'angle azimutal que fait l'aimantation de la sonde par rapport à l'axe de facile aimantation due à l'application d'un champ magnétique  $H_{\text{ext}}$ .

la fréquence de résonance du levier par :

$$\omega_c = \sqrt{\frac{k}{m}}, \quad (2.13)$$

on s'attend à ce que la résonance du levier se déplace vers les hautes fréquences sous l'application d'un champ statique. Il est important de caractériser cette dépendance en champ de  $\omega_c$  si on veut être capable de suivre la résonance du levier au cours d'une mesure de résonance ferromagnétique effectuée en balayant  $H_{\text{ext}}$ .

Un modèle simple [53, 79] permet de rendre compte *qualitativement* de l'influence du champ magnétique sur les propriétés mécaniques de la sonde. Considérons un levier à l'extrémité duquel est fixé une particule magnétique monodomaine de volume  $v$ , d'aimantation  $\mathcal{M}$  et possédant une anisotropie uniaxiale  $K_u$ . Les deux degrés de liberté pertinents pour l'analyse de ce système sont l'angle de flexion  $\alpha$  du levier à son extrémité et l'angle  $\theta$  de l'aimantation de la pointe par rapport à l'axe de facile aimantation due à l'application d'un champ magnétique  $H_{\text{ext}}$ . L'énergie magnétique  $\mathcal{E}_m$  de la pointe est la somme d'une énergie Zeeman  $\mathcal{E}_z$  qui favorise l'alignement de l'aimantation de la particule dans le champ extérieur et des énergies d'anisotropie magnéto-cristalline  $\mathcal{E}_k$  et démagnétisante  $\mathcal{E}_d$  qui tendent, dans ce cas particulier, à garder l'aimantation dans la direction de l'axe facile<sup>1</sup> :

$$\mathcal{E}_m = \mathcal{E}_z + \mathcal{E}_k + \mathcal{E}_d, \quad (2.14)$$

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_m = & -\mathcal{M}vH_{\text{ext}} \cos(\alpha - \theta) + K_u v \sin^2 \theta \\ & + 2\pi\mathcal{M}^2 (N_{\perp} \sin^2 \theta + N_{\parallel} \cos^2 \theta), \end{aligned} \quad (2.15)$$

Pour une déflexion du levier  $\alpha$  donnée, la minimisation de  $\mathcal{E}_m$  par rapport à  $\theta$  dans le cas de petites déviations par rapport à l'axe d'anisotropie permet d'obtenir l'angle d'équilibre  $\theta_0$  de l'aimantation de la pointe par rapport à l'axe facile :

$$\theta_0(\alpha, H_{\text{ext}}) = \left( \frac{H_{\text{ext}}}{H_{\text{an}} + H_{\text{ext}}} \right) \alpha, \quad (2.16)$$

<sup>1</sup>Cette influence de l'énergie démagnétisante correspond au cas particulier d'une pointe magnétique allongée. Dans le cas d'une pointe aplatie, l'énergie démagnétisante aura au contraire tendance à garder l'aimantation dans le plan.

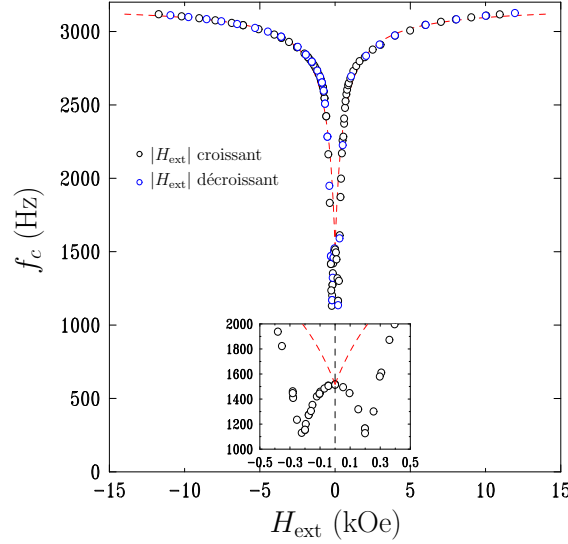


FIG. 2.8: **Dépendance en champ magnétique de la fréquence de résonance du levier :** *Le champ est balayé sur un cycle complet entre -12 et +12 kOe en partant de l'état à champ nul. La mesure est complètement réversible. La ligne en pointillée est un ajustement des données par l'ÉQU.2.30 pour un champ d'anisotropie  $H_{an} = 532$  G et un rapport  $L^*/L = 0,19$ . On a supposé une aimantation à saturation  $\mathcal{M} = 500$  emu/cm<sup>3</sup>, une anisotropie uniaxiale  $H_k = 50$  G, une sonde de volume  $v_{sonde} = 0,76 \times 10^{-8}$  cm<sup>3</sup> et une raideur en champ nul  $k_0 = 0,025$  N/m. L'insère est une vue détaillée du comportement à bas champ, que nous attribuons à l'annihilation/nucléation de domaines magnétiques dans la pointe.*

avec

$$H_{an} = H_k + H_d \quad \text{champ magnétique effectif d'anisotropie} \quad (2.17)$$

$$H_k = 2K_u/M \quad \text{champ d'anisotropie magnétocristalline} \quad (2.18)$$

$$H_d = -4\pi\mathcal{M}\Delta N \quad \text{champ démagnétisant} \quad (2.19)$$

$$\Delta N = N_{\parallel} - N_{\perp} \quad \text{facteur d'anisotropie de forme} \quad (2.20)$$

Le couple  $\tau_z$  qui agit sur le levier vaut :

$$\tau_z = -\frac{\partial}{\partial \alpha} \mathcal{E}_m(\alpha, \theta_0), \quad (2.21)$$

soit, dans la limite des petites déflexions :

$$\begin{aligned} \tau_z &= -\mathcal{M}vH_{ext}(\alpha - \theta_0) \\ &= -\mathcal{M}vH_{an}\alpha \left( \frac{H_{ext}}{H_{an} + H_{ext}} \right). \end{aligned} \quad (2.22)$$

Le traitement du problème dynamique des mouvements d'un levier peut se révéler assez complexe [12]. Nous retiendrons simplement que dans le régime linéaire, un microlevier est décrit par un ensemble de modes propres indépendants de vibration en flexion et en torsion. Chacun de ces modes peut être modélisé par un oscillateur harmonique unidimensionnel caractérisé par une masse effective

$$m^* = \eta \times m. \quad (2.23)$$

Pour une géométrie donnée, le coefficient  $\eta$  dépend du type et de l'indice du mode<sup>2</sup>. On peut également caractériser un mode par sa longueur effective  $L^*$  définie à partir de l'EQU.2.23 en introduisant la densité linéique  $\sigma_l$  du levier qui est indépendante de sa déformation :

$$L^* = \frac{m^*}{\sigma_l} = \eta \times L. \quad (2.24)$$

Dans la limite des petites amplitudes de vibration  $z$ , on a  $\alpha \approx z/L^*$  et l'effet de ce *couple magnétique* se traduit par un terme de force additionnel  $F_m$  dans l'équation du mouvement du levier :

$$F_m = \tau_z/L^*, \quad (2.25)$$

où  $L^*$  est la longueur effective du levier. Dans le cadre de ce modèle simple, l'effet du champ magnétique se résume donc à une modification de la constante de raideur du levier :

$$m\ddot{z} = -k_{\text{eff}}z, \quad (2.26)$$

avec

$$k_{\text{eff}} = k_0 + \Delta k(H_{\text{ext}}) \quad (2.27)$$

$$= k_0 + \frac{v\mathcal{M}H_{\text{an}}}{L^{*2}} \left( \frac{H_{\text{ext}}}{H_{\text{an}} + H_{\text{ext}}} \right). \quad (2.28)$$

Si on suppose que la longueur effective du levier  $L^*$  est indépendante du champ magnétique, ce raidissement se traduit par un décalage vers les hautes fréquences de la résonance du levier qui s'écrit, dans la limite  $\Delta k/k \ll 1$  :

$$\frac{\Delta\omega}{\omega} = \frac{1}{2} \frac{\Delta k}{k} \quad (2.29)$$

$$= \frac{\mathcal{M}v}{2k_0L^{*2}} \left( \frac{H_{\text{ext}}}{1 + H_{\text{ext}}/H_{\text{an}}} \right). \quad (2.30)$$

La FIG.2.8 présente un ajustement par l'EQU.2.30 d'une mesure de la résonance du levier pour un champ extérieur compris entre -12 et +12 kOe<sup>3</sup> et montre que ce modèle, malgré son apparente simplicité, rend bien compte du comportement en champ de la sonde mécanique dans le régime où le champ extérieur est suffisant pour saturer le cylindre magnétique (*i.e.*  $|H_{\text{ext}}| \gtrsim 1$  kOe). Les deux paramètres ajustables sont le champ effectif d'anisotropie  $H_{\text{an}} = 532$  G et le rapport  $\eta = L^*/L = 0,19$  de la longueur effective  $L^*$  du levier sur sa longueur réelle  $L$ . Tous les autres paramètres rentrant dans l'évaluation de l'EQU.2.30 sont connus ( $\mathcal{M} = 500$  emu/cm<sup>3</sup>,  $v = 0,76 \times 10^{-8}$  cm<sup>3</sup>,  $L = 320$   $\mu$ m,  $k_0 = 0,025$  N/m = 25 dyn/cm et  $f_0 = \omega_0/2\pi = 1518$  Hz). La valeur du rapport  $\eta$  que nous avons déduite de cet ajustement est en accord avec des simulations numériques des modes propres de vibration de leviers triangulaires, qui prédisent des valeurs comprises entre 0,14 et 0,2 [12]. Quant au champ effectif d'anisotropie  $H_{\text{an}} = 532$  G que nous en déduisons,

<sup>2</sup>Pour le mode fondamental de flexion d'un levier rectangulaire (*i.e.* une poutre),  $\eta = 0,24$ . Pour des leviers triangulaires comme celui que nous avons utilisé,  $\eta$  est compris entre 0,137 et 0,2 suivant la géométrie [12].

<sup>3</sup>L'ajustement concerne les données expérimentales pour  $H_{\text{ext}} \gtrsim 1$  kOe, c'est à dire pour une pointe saturée comme supposé par notre modèle. On a de plus utilisé la valeur expérimentale en champ nul pour ordonnée à l'origine.

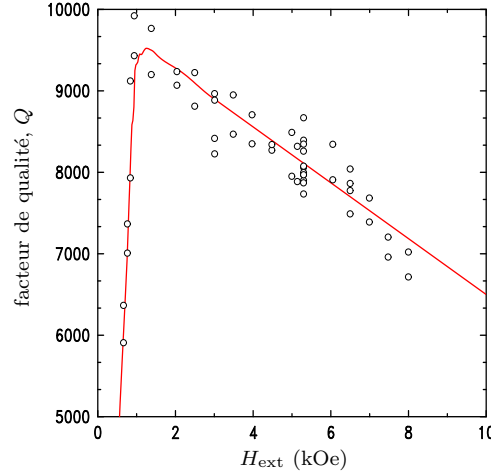


FIG. 2.9: Dépendance en champ magnétique du facteur de qualité :

il est très supérieur à l'anisotropie magnéto-cristalline  $H_k \approx 50$  G normalement admise pour ce matériau [50]. L'anisotropie déduite de l'ajustement est donc principalement une anisotropie de forme, qui correspond ici à un facteur  $\Delta N = -0,077$ . À l'aide de la formule d'Osborn [61, 83] pour un facteur d'anisotropie de forme négatif (c'est-à-dire pour un ellipsoïde de révolution allongé), on peut déterminer le rapport  $\eta = l_{\parallel}/l_{\text{perp}}$  des dimensions longitudinale et latérale de la pointe :

$$\Delta N = \frac{3}{2(\eta^2 - 1)} \left[ \frac{\eta}{\sqrt{\eta^2 - 1}} \ln \left( \eta + \sqrt{\eta^2 - 1} \right) - 1 \right] - \frac{1}{2}. \quad (2.31)$$

La valeur de  $\Delta N$  obtenue expérimentalement correspond à un ellipsoïde de révolution ayant un rapport  $\eta = l_{\parallel}/l_{\text{perp}} = 1,22$ . Cette valeur est à comparer avec le rapport de la longueur  $l_b = 32 \pm 3 \mu\text{m}$  au diamètre  $D_b = 2R_b = 18 \pm 1 \mu\text{m}$  de la pointe magnétique tels que mesurés en microscopie électronique (FIG.2.1), qui vaut quand à lui  $1,8 \pm 0,2$ . Cette différence peut s'expliquer d'une part du fait que notre pointe n'est pas, contrairement à ce que présume le modèle, un ellipsoïde de révolution (pour un cylindre, ceci n'est vrai que s'il est infiniment long). D'autre part, nous avons modélisé toute la dépendance en champ de la sonde sous la forme d'une simple force de rappel d'origine magnétique (EQU.2.25), sans prendre en compte l'effet du couple  $\tau_z$  sur la déformation du levier, hypothèse qui se traduit dans notre modèle par une longueur effective  $L^*$  que nous supposons indépendante du champ magnétique.

#### 2.2.4.4 Facteur de qualité Q.

La dépendance en champ du facteur de qualité a été déterminée à partir de mesures de réponse en excitant le levier avec la bobine de modulation pour différentes valeurs du champ extérieur  $H_{\text{ext}}$  entre 0 et 8 kOe. Le résultat de cette mesure est présenté sur la FIG.2.9.

On distingue deux contributions à la dépendance en champ de  $Q$ . L'augmentation abrupte de  $Q$  entre 0 et 1 kOe est attribuée à la suppression de la contribution des domaines aux "frottement magnétiques". Partant d'un état multidomaine en champ nul,

le champ extérieur va annihiler les domaines magnétiques jusqu'à saturation complète de la pointe pour  $H_{\text{ext}} \approx 1$  kOe. Une fois l'échantillon saturé, il ne reste que la friction magnétique associée à l'oscillation du moment magnétique de la pointe dans le champ extérieur et qui augmente linéairement avec le champ [78]

## 2.3 Étude comparée de la sensibilité : levier vs. micro-bobine

Dans cette section, nous allons comparer les limites de sensibilité entre notre détection mécanique et une méthode inductive. La quantité pertinente est bien sûr le rapport signal sur bruit (RSB). Le principe de ces deux approches, bobine ou levier, est assez semblable. Dans les deux cas, il est basé sur un couplage magnétique entre le système de spin et un oscillateur linéaire. Il est possible de montrer (et on se référera ici aux travaux de Sidles et Rugar [75]) qu'il existe une expression commune pour les deux RSB :

$$\text{RSB} \propto MV_{\text{tranche}} \frac{\sqrt{\frac{\omega_c Q}{k_m}}}{\sqrt{4k_B T \Delta f}}. \quad (2.32)$$

Le pré-facteur est proportionnel au nombre total de spins excités, avec  $M$  l'amplitude de l'aimantation de l'échantillon ( $M_t$  pour une bobine,  $M_s - M_z$  pour un levier) et  $V_{\text{tranche}}$  est le volume de la tranche résonante. La valeur de cette dernière dépend de l'ordre dans le système magnétique. Elle est proportionnelle au volume de l'échantillon pour des spins ferromagnétiques. Elle est inversement proportionnelle au gradient de champ  $g$  si on étudie des spins paramagnétiques. Le dénominateur représente le bruit thermique dans la bande passante de détection  $\Delta f$ ,  $T$  étant la température et  $k_B$  la constante de Boltzman. La sonde elle-même est entièrement caractérisée par trois paramètres : sa fréquence de résonance  $f_c = \omega_c/2\pi$ , son facteur de qualité  $Q$  et sa constante de raideur magnétique  $k_m$ . Une faible valeur de  $k_m$  signifie que la sonde utilise très peu d'énergie pour changer l'amplitude du champ magnétique à la position de l'échantillon. La raideur d'une bobine est donnée par  $k_m \approx V_{\text{bobine}}/2\pi$  [75]. Un levier change la valeur du champ local en déplaçant spatialement l'aimant permanent et  $k_m = k/g^2$  [75] avec  $k$  la constante de raideur mécanique et  $g$  le gradient de champ. Cette expression illustre déjà tout l'intérêt d'utiliser une détection mécanique pour faire de l'IRM. Un accroissement du gradient de champ  $g$  améliore la résolution spatiale sans détériorer le RSB. La perte de signal dans  $V_{\text{tranche}}$  est complètement compensée par la décroissance de  $k_m$ .

En utilisant l'EQU.2.32, nous allons montrer brièvement dans ce qui suit, comment modifier la géométrie de l'oscillateur pour optimiser le RSB.

Toutes choses étant égales, il est toujours avantageux d'accroître la fréquence de l'oscillateur  $f_c$ . Une bobine (ou une cavité) peut facilement être accordée pour opérer dans la bande spectrale radio- ou hyper-fréquence, permettant par là même une mesure directe de la composante dynamique de la susceptibilité, qui, elle, oscille à la fréquence de Larmor. Dans ce cas le banc de mesure bénéficie en sus de l'amplification du signal associée à l'étroitesse de la largeur de la raie. Au contraire, les leviers d'AFM utilisés dans un montage MRFM, sont actuellement limités au bas de la bande r.f. Ils ne peuvent donc mesurer que la composante statique de la susceptibilité. Si l'on s'interroge sur les perspectives futures : monter vers des plus hautes fréquences implique principalement une

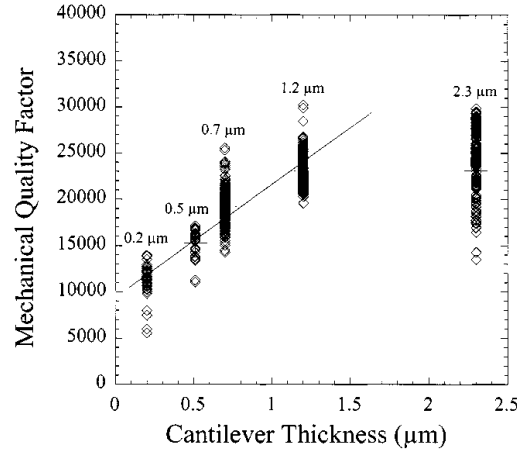


FIG. 2.10: **Dépendance en taille du facteur de qualité** : Cette figure montre le facteur de qualité,  $Q$ , de cinq leviers en nitrure de silicium dont les épaisseurs respectives sont 0.2, 0.51, 0.7, 1.2, and 2.3  $\mu\text{m}$ . Le  $Q$  est relativement indépendant de la longueur ou de la largeur du levier. D'après [91].

diminution de la masse du levier. Des études indépendantes sur les propriétés mécaniques des nanotubes de carbone [64] ont montré qu'il existe des oscillateurs mécaniques ayant des fréquences de résonance allant jusqu'à 2GHz [66]. Cependant, la détection de tels mouvements posent de nouvelles difficultés [66] car on ne peut certainement plus utiliser les méthodes optiques classiques décrites dans ce mémoire. Nous reviendrons sur ce point délicat plus bas en évoquant le bruit du détecteur. Pour conclure le paragraphe, il est important de rappeler, que dans certains cas, la mesure de la composante longitudinale peut se révéler très importante. Nous donnerons un exemple au Chapitre 4, où il s'avère que, pour des matériaux ferromagnétiques, le composante longitudinale donne une mesure directe de la partie intrinsèque à la relaxation.

L'ÉQU.2.32 stipule que  $k_m$  doit diminuer si l'on veut améliorer le RSB. Dans le cas d'une détection inductive, cela implique qu'il faille réduire le volume de la bobine. Il existe en fait un optimum pour le RSB, quand la bobinage remplit exactement le volume donné de l'échantillon. Il s'agit de la configuration ayant le meilleur facteur de remplissage. Du point de vue de la micro-fabrication, il est cependant difficile d'imaginer un enroulement hélicoïdal en dessous de la taille micrométrique [59]. Si l'on prend l'exemple d'une micro-bobine plane ayant un diamètre intérieur de 60  $\mu\text{m}$ , elle aura un  $k_m \approx 10^{-10} \text{ cm}^3$ . En comparaison, la constante de raideur  $k$  d'un micro-levier dépend comme le cube de son rapport épaisseur sur longueur. Les micro-levers les plus fins (0.17  $\mu\text{m}$  d'épaisseur) obtenus par des techniques classiques de micro-fabrication [91], ont une constante de raideur qui est de l'ordre de  $k \approx 10^{-4} \text{ N/m}$  à zéro champ. En prenant une séparation pointe échantillon d'environ un micron, le gradient de champ produit est de l'ordre de  $g \approx 10^5 \text{ T/m}$ , ce qui correspond à  $k_m \approx 10^{-15} \text{ cm}^3$  : soit une amélioration de plusieurs



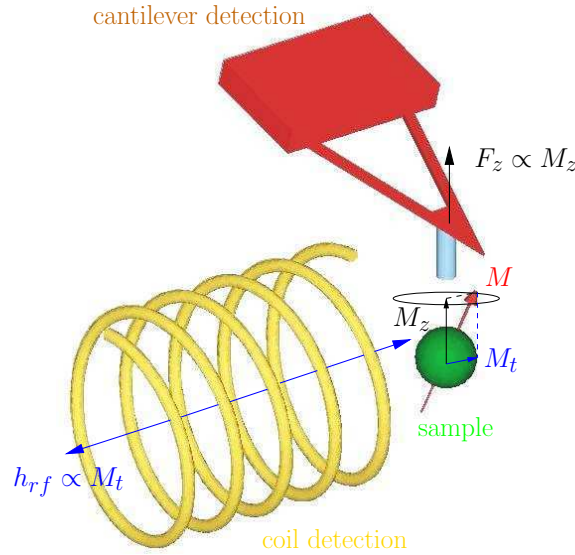


FIG. 2.11: **Comparaison entre techniques de détection** : Schéma montrant la détection mécanique et la détection inductive couplées à la précession d'un moment magnétique.

ordres de grandeur de la sensibilité.

On note que le RSB dépend du facteur de qualité  $Q$  de l'oscillateur. Plusieurs paramètres extérieures (*e.g.* la température ou la pression) peuvent influencer la valeur de  $Q$ . Le facteur de qualité d'une bobine décroît quand la taille de la bobine diminue. En effet, à la fois l'inductance et la conductivité du bobinage baissent. En prenant l'exemple de la micro-bobine citée ci-dessus, celle-ci a un  $Q$  apparent de l'ordre de 1 [63]. L'emploi de matériaux supraconducteurs améliore sensiblement le résultat, mais d'autres processus de dissipation apparaissent, par exemple la pénétration de vortex magnétiques à l'intérieur de la bobine [8]. Le  $Q$  d'un levier baisse aussi avec la taille. Il dépend essentiellement de l'épaisseur (voir FIG.2.10) et il est raisonnablement indépendant des autres dimensions, longueur et largeur [91]. En prenant à nouveau l'exemple du levier faisant  $0.17 \mu\text{m}$  d'épaisseur en silicium mono-cristallin, le  $Q$  est de l'ordre de  $10^4$  à la température ambiante. Ce résultat suggère que les processus physiques responsables de la dissipation dans les micro-leviers sont parmi les plus faibles pour ces tailles de sonde [48].

Un dernier point important concerne le bruit du détecteur. L'Equ.2.32 présuppose que le RSB n'est limité que par les fluctuations thermiques intrinsèques de l'oscillateur et non par le bruit de l'amplification électronique associée. Ce point est effectivement vérifié pour une détection mécanique. Une détection laser, soit par interférométrie ou par déflexion d'un faisceau, confère un bruit additionnel qui est de plusieurs ordres de grandeurs inférieur aux fluctuations thermiques du levier. Dans toutes les études de MRFM, le bruit final est toujours limité par le bruit Johnson (intrinsèque) de l'élément oscillant. Mais ce genre de résultat est beaucoup plus difficile à répéter à plus hautes fréquences. Les amplificateurs r.f. à ultra-faible bruit sont des équipements sophistiqués utilisant un maser ou un amplificateur paramétrique [65].

En conclusion, une analyse dimensionnelle [48] montre que les leviers mécaniques sont de meilleurs détecteurs comparés aux bobines quand la taille de l'échantillon est inférieure à quelques dizaines de microns. Les plus petits leviers disponibles [91] ont déjà la sensibilité pour détecter le spin unique, bien que ce soit dans des conditions expérimentales très

spécifiques (ultra-basses températures, large champ magnétique, vide secondaire, etc...) Mais de nouvelles difficultés surgissent dès qu'il s'agit de coupler le système de spin à un levier avec ce niveau de sensibilité. Aller vers de larges gradients de champ magnétique avec un levier très souple implique l'approche d'un fluctuateur magnétique important près de l'objet à mesurer (e.g. le mouvement Brownien du levier mentionné au paragraphe précédent [54]). Ceci limite à présent la distance pointe-échantillon minimale à quelques centaines de nanomètres. Ainsi donc, même si la sensibilité du spin unique est envisageable dans un futur proche sur des systèmes paramagnétiques dilués [78, 51], d'importantes difficultés subsistent avant d'atteindre la vraie résolution atomique. En bref, les processus physiques qui limitent la résolution spatiale ne sont pas encore clairement élucidés [32]. Les progrès en la matière dépendront certainement de notre compréhension des processus de relaxation sur de petits ensembles statistiques en présence d'un aimant permanent extérieur.

Le fil directeur de ce mémoire sera de montrer l'intérêt qu'apporte cette technique dans la caractérisation des phénomènes de relaxation. En particulier on soulignera les aspects originaux, soit spécifiques aux petits échantillons (chapitre 3), soit à la quantité mesurée (chapitre 4).



# Chapitre 3

## Étude de systèmes paramagnétiques

### 3.1 Introduction

Ce chapitre est dédié aux propriétés dynamiques d'une assemblée microscopique de spins paramagnétiques (on parle de paramagnétisme lorsque les couplages magnétiques entre spins sont très faibles par rapport à l'agitation thermique). On s'intéressera en particulier au moment magnétique nucléaire. Cette partie est volontairement succincte puisque nous avons inclu dans l'annexe un long article de revue [40] qui décrit cette problématique de manière exhaustive et détaillée. On s'attachera simplement à mettre en valeur les aspects originaux de notre contribution.

La partie essentielle de notre travail a été de montrer qu'un MRFM est capable de mesurer à la fois la relaxation transverse et longitudinale d'un système magnétique nucléaire. Une séquence de mesure a été proposée combinant à la fois des impulsions radio-fréquence et une détection des signaux nucléaires en régime permanent. Nous avons volontairement fait ces mesures sur un échantillon très fin dans le but de mettre en évidence de ces phénomènes physiques qui seraient spécifiques aux échantillons de petites tailles. En particulier, en mesurant un monocristal de sulfate d'ammonium,  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ , de  $7\mu\text{m}$  d'épaisseur, nous avons montré l'existence de deux temps de relaxation  $T_{1s} = 0.4\text{s}$  et  $T_{1l} = 5\text{s}$ . La première valeur correspond au  $T_1$  reporté dans la littérature pour ce composé [60]. Nous avons attribué le  $T_1$  court à une contamination de la surface par l'eau. Nous avons profité de cette inhomogénéité spatiale naturelle pour étudier les capacités d'imagerie de cette technique. En utilisant la relaxation comme agent de contraste, nous avons déterminé le profil de contamination dans l'épaisseur avec une résolution spatiale de quelques microns.

### 3.2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé est décrit en détail dans le premier article de l'annexe [40]. On note que la configuration retenue est dite inversée, i.e. que l'échantillon est collé sur le levier. Cette approche permet de diminuer sensiblement les bruits parasites lorsque de fortes puissances radio-fréquence (r.f.) sont utilisées. Historiquement, il s'agissait aussi de notre première mesure de résonance, et donc notre compréhension des phénomènes parasites était à l'époque relativement primitive. Nous montrerons dans le chapitre suivant des mesures en géométrie normale (sonde sur le levier). Les FIG.3.1 et FIG.3.2 sont deux

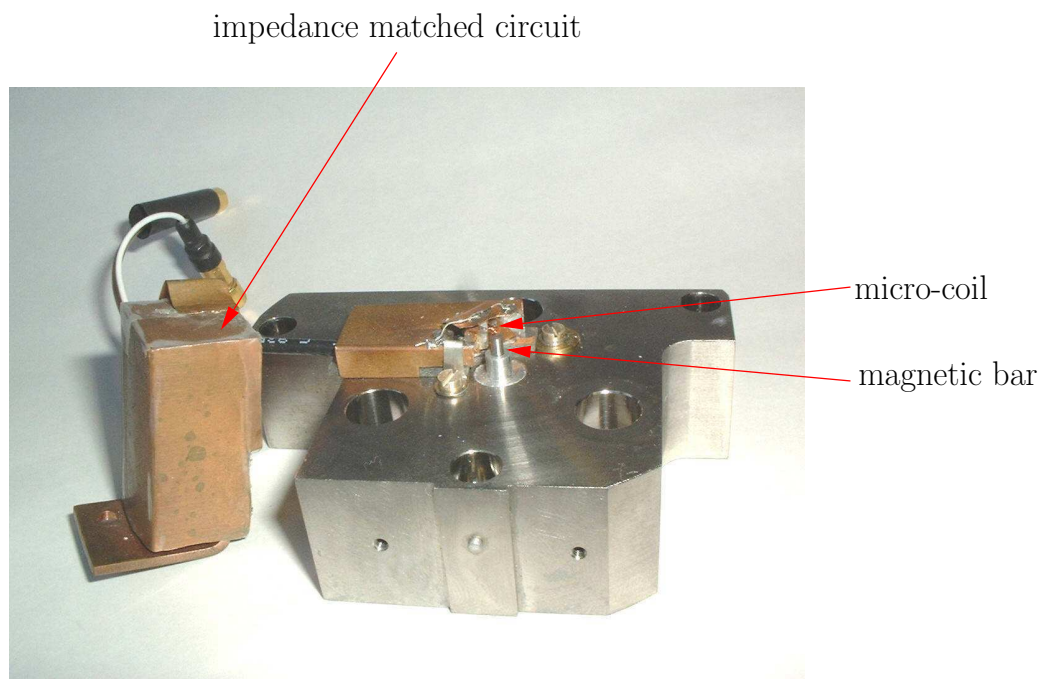


FIG. 3.1: **Vue latérale du socle d'excitation** : Photographie du socle comprenant la bobine excitatrice et du barreau de Fe servant à produire le gradient de champ sur l'échantillon.

photographies de l'ensemble montrant l'échantillon, la bobine d'excitation radio-fréquence et le barreau de Fe servant à produire le gradient de champ local. On se référera à l'article en Annexe pour le schéma de principe et pour des images en microscopie électronique de l'échantillon.

Pour que le signal soit détectable, on renverse périodiquement l'aimantation nucléaire à la fréquence d'un mode mécanique du levier. Ce retournement de l'aimantation est obtenu en soumettant l'échantillon à un champ électromagnétique modulé en fréquence. Le protocole utilisé est basé sur une séquence de passages adiabatiques rapides. Cette technique bien connue des physiciens en RMN permet de renverser efficacement l'aimantation de noyaux ayant un faible taux de relaxation en faisant passer la fréquence d'un champ radio-fréquence par la valeur de la résonance. Le principe du passage adiabatique est de garder l'angle entre l'aimantation et l'axe instantané de précession le plus faible possible afin que le spin reste toujours en équilibre avec le champ efficace. La difficulté consiste à choisir une vitesse de retournement qui doit donc être petite devant la période de précession mais rapide devant les phénomènes de relaxation. La fréquence de la porteuse correspond à la fréquence de Larmor du type de noyau sélectionné (55 MHz pour  $^1\text{H}$  (proton)). L'amplitude de modulation détermine la tranche de l'échantillon excitée. La fréquence de modulation est égale à la fréquence de vibration du mode mécanique choisi. En balayant le champ magnétique, la résonance se produit pour des tranches successives de l'échantillon et on obtient ainsi une cartographie de densité en proton. Par comparaison avec la RMN classique, l'augmentation du gradient de champ dans notre dispositif permet d'améliorer la résolution spatiale sans détériorer le rapport signal sur bruit et ainsi de sonder de très petits objets. Une partie de notre étude a donc été de montrer le domaine de validité de cette approximation et surtout de donner une expression qui permette de calculer quantitativement l'amplitude du signal en prenant en compte

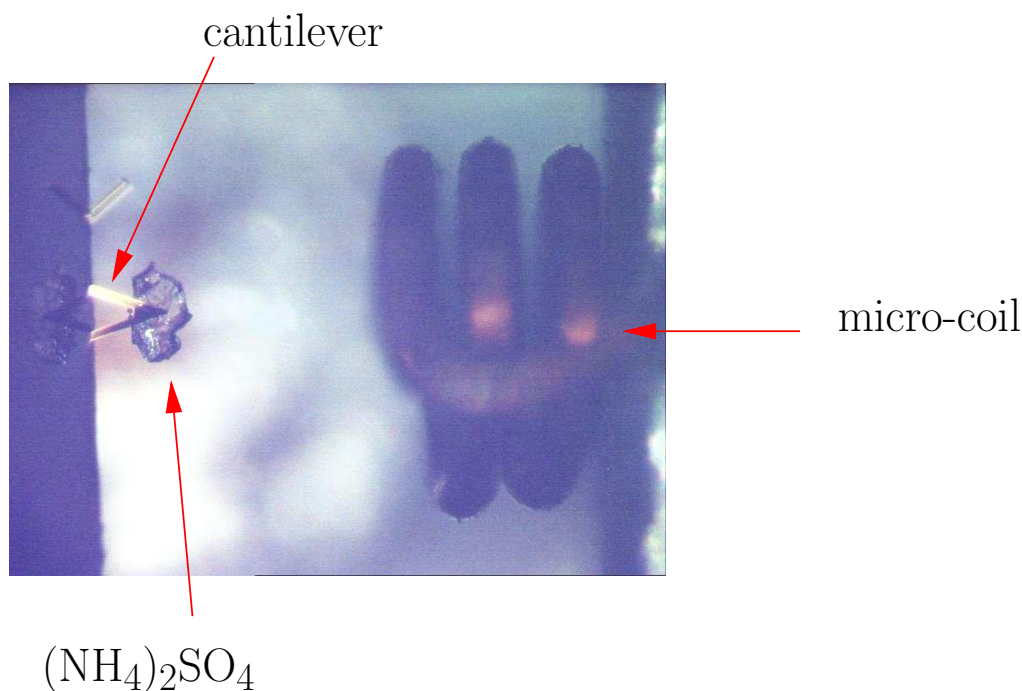


FIG. 3.2: **Vue de dessus du microscope à résonance magnétique** : Photographie à travers l'objectif d'un microscope optique de l'ensemble pointe, bobine et échantillon en vue de dessus. On distingue à gauche la réflexion du levier sur un miroir en Au. Cette astuce permet de maintenir le levier dans un plan horizontal et de défléchir le faisceau laser à 30 degré par rapport à l'axe vertical.

les déviations d'adiabaticité (cf. annexe de l'article dans l'appendice pour un traitement rigoureux).

### 3.3 Mesure de la relaxation

Toute la difficulté de cette partie est de concevoir une séquence de mesures qui permette de sonder la dynamique à l'échelle de la relaxation (*i.e.* la microseconde) avec un outil de mesure qui est comparativement très lent, puisque les fréquences mécaniques du levier sont de quelques kHz, *i.e.* des périodes de l'ordre de la milliseconde. L'astuce consiste à combiner la séquence des passages adiabatiques rapides avec des pulses r.f. Un premier train de pulses permet de manipuler l'angle que fait l'aimantation avec le champ de polarisation. Après une période d'évolution temporelle variable, un deuxième train de pulses rabat la composante de  $M$  à mesurer le long de l'axe du champ. La valeur instantanée est alors proportionnelle à l'amplitude du signal mécanique induit par une séquence de passages adiabatiques rapides. Nous avons ainsi pu mesurer mécaniquement pour la première fois un écho de spin sur un système nucléaire. Nous avons ensuite mis en application ces nouvelles possibilités pour la mesure du  $T_2$  et du  $T_1$ . Nous laissons au lecteur le soin de lire la référence en annexe [40] pour plus de détails.

### 3.4 Conclusion

En conclusion, dans ce travail nous avons montré comment l'on pouvait mesurer le  $T_1$  et le  $T_2$  d'un échantillon microscopique à partir d'une détection mécanique. Nous avons aussi proposé une analyse complète de l'influence des paramètres expérimentaux sur la sensibilité ainsi que ses limites. Ce dispositif, réalisé à titre de test, permet de mesurer l'aimantation de  $10^{14}$  spins nucléaires avec une résolution spatiale transverse de  $4\mu\text{m}$  à la température ambiante et sous un champ de 1T. Ceci nous a permis d'obtenir la première étude quantitative du signal mais aussi, de mettre le doigt sur les conséquences pour la résolution spatiale lorsqu'on utilise un contraste de relaxation. Historiquement, nous avons abordé cette thématique sous l'angle de la RMN. Très vite il est apparu que la poursuite d'un tel travail nécessiterait de développer un nouvel outil permettant de travailler dans des champs plus intenses et surtout d'aller vers les basses températures. Au cours de ces dernières années, nous avons travaillé sur la réalisation d'un tel microscope, en profitant de nos connaissances acquises au cours du temps. L'esquisse de cet instrument cryogénique sera donnée dans le dernier chapitre de perspectives. En attendant, il semblait judicieux de poursuivre nos mesures de résonances à 300K sur des matériaux ferromagnétiques pour lesquels les mesures à la température ambiante sont parfaitement adéquates. Cette étude fera l'objet du prochain chapitre.

# Chapitre 4

## Étude des systèmes ferromagnétiques

Dans ce chapitre, nous étudierons le cas de spins couplés ferromagnétiquement. Nous nous intéresserons dans un premier temps à la sensibilité de la détection mécanique en présentant les spectres de détection sur des échantillons microscopiques. Enfin, nous montrerons comment cette technique peut être utilisée pour caractériser le terme d'amortissement dynamique.

### 4.1 Introduction

Contrairement au chapitre précédent, le ferromagnétisme est un phénomène collectif où les spins sont fortement couplés entre eux par des forces électriques et magnétiques très intenses. Comme l'ont montré Landau et Lifshitz [44], ces différentes interactions peuvent être traitées sur un plan phénoménologique en faisant précesser les spins responsable du ferromagnétisme autour d'un champ effectif moyen  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$ . L'équation du mouvement à l'échelle locale s'écrit simplement :

$$i\hbar\dot{\mathbf{M}} = [\mathbf{M}, \mathcal{H}_{\text{eff}}], \quad (4.1)$$

où  $\mathcal{H}_{\text{eff}}$  est l'Hamiltonien du système magnétique. Dans le cas général, cet Hamiltonien peut être représenté comme la somme de six contributions :

1. L'énergie Zeeman  $\mathcal{E}_z = -\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{ext}}$  qui représente l'interaction du spin avec le champ extérieur et ne dépend que de l'angle respectif entre ces deux vecteurs.
2. L'énergie démagnétisante  $\mathcal{E}_d = 2\pi (N_x M_x^2 + N_y M_y^2 + N_z M_z^2)$  produite par les charges de surface qui fait intervenir la forme géométrique de l'échantillon.
3. L'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline  $\mathcal{E}_k = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + \dots$  qui favorise l'alignement de l'aimantation avec les axes principaux du réseau cristallin.
4. L'énergie magnéto-élastique qui tend à aligner la direction de l'aimantation le long des axes des contraintes de déformation.
5. L'énergie d'échange,  $\mathcal{E}_{ex} = \frac{A}{M_S} (\nabla \cdot \mathbf{M})^2$  qui est une fonction de l'inhomogénéité spatiale de l'aimantation
6. Enfin une énergie de surface qui introduit l'anisotropie à l'interface des couches aimantées.



Dans l'état d'équilibre thermodynamique, la direction du vecteur aimantation  $\mathbf{M}$  coïncide localement avec celle du champ effectif

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = -\frac{\partial \mathcal{H}_{\text{eff}}}{\partial \mathbf{M}}. \quad (4.2)$$

La dynamique dans le cas général d'un échantillon à aimantation non-uniforme est complexe et le traitement nécessite de recourir à des moyens de calcul numérique. Dans une expérience classique de résonance ferromagnétique (FMR), l'échantillon est placé dans un champ uniforme suffisamment intense pour saturer l'aimantation parallèlement à la direction du champ appliqué. L'énergie Zeeman est alors de plusieurs dizaines de  $\mu\text{eV}$  et la fréquence de précession de Larmor est généralement placée dans la bande micro-onde.

La relaxation vers la configuration d'équilibre fait intervenir un terme supplémentaire d'amortissement qui décrit phénoménologiquement le couplage des spins avec les autres degrés de liberté du système. Par analogie avec la force de frottement visqueuse de la mécanique classique, on définit une force proportionnelle à la dérivée temporelle du vecteur aimantation  $\dot{\mathbf{M}}$ . L'équation du mouvement ainsi modifiée s'écrit

$$\dot{\mathbf{M}} = \{\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}\} - \alpha \frac{\mathbf{M}}{M_s} \times \dot{\mathbf{M}}, \quad (4.3)$$

où  $\alpha$  est appelé paramètre de Gilbert. Il convient de rappeler que le formalisme utilisé jusqu'à présent n'est valide qu'à l'échelle locale ou du moins pour des dimensions petites devant la longueur d'échange (l'échelle de longueur pertinente pour l'approximation macrospin). En effet, une région  $V$  d'aimantation homogène  $M$  est représentée par un macrospin de moment magnétique  $MV$  et on notera que la dynamique décrite par l'équation 4.3 conserve la norme de  $M$ .

L'extension de l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert à un échantillon microscopique doit prendre en compte les non-uniformités spatio-temporelles de la dynamique. Les quantités mesurées sont en effet des moyennes spatiales prises sur le volume de l'échantillon. Une décohérence spatiale de la précession diminue la valeur résultante et introduit donc un terme d'amortissement supplémentaire. Il est conceptuellement plus simple de regarder le problème sous l'angle d'un bilan énergétique entre différents réservoirs des ondes de spin  $b_k$ . On distingue trois types d'excitations qui se couplent aux photons de pompage. Le bain de magnons uniformes, que l'on observe dans une expérience classique de RFM; les magnons dégénérés, qui ont la même énergie que les photons excitateurs mais qui ont une composante transverse à moyenne spatiale nulle et enfin le réservoir de magnons thermiques. La 4.1 est une représentation schématique de ces trois contributions. On introduit généralement la contribution des magnons thermiques dans  $M_s$ , l'aimantation à saturation à l'équilibre thermique.

On distingue alors la dynamique de la composante longitudinale

$$M_s - \overline{M_z} = \frac{g\mu_B}{V} \sum_{\{k=0+k \neq 0\}} b_k b_k^\dagger = \frac{g\mu_B}{V} n_t,$$

proportionnelle à  $n_t$ , le nombre total de magnons excités. Les magnons étant les excitations élémentaires qui retournent le spin, la composante longitudinale est réduite de  $g\mu_B$  pour chaque magnon excité. En revanche, la composante transverse n'est sensible uniquement

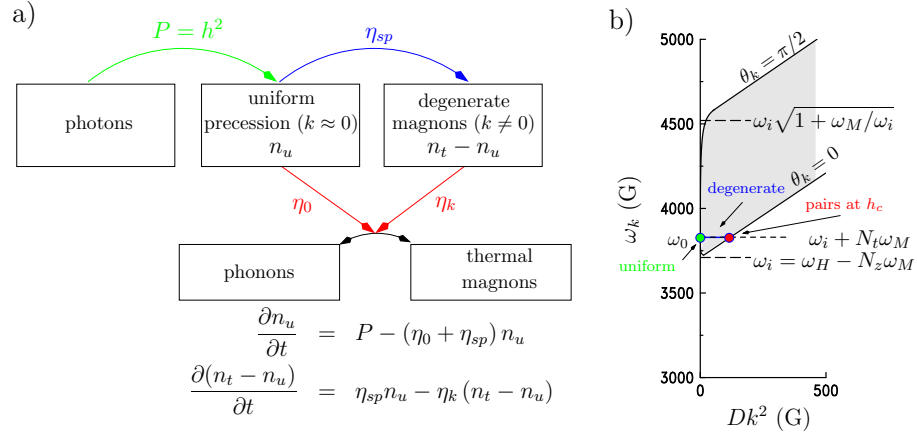


FIG. 4.1: **Canaux de relaxation.** (a) Les processus qui contribuent à la relaxation de la composante transverse et donc au  $T_2 = 2/(\eta_0 + \eta_{sp})$  conservent l'énergie totale du système de spins. Ceux qui contribuent au  $T_1 = 1/\eta_0$  couplent le système de spin au degrés de liberté externes et permettent de relaxer cette énergie totale. (b) Bande de magnons pour un disque de rapport d'aspect fini. La bande en trait bleu représente les magnons dégénérés avec le mode uniforme.

qu'au nombre de magnons en précession uniforme,  $n_u$  :

$$\frac{\overline{M_t}^2}{2M_s} = \frac{g\mu_B}{V} \sum_{\{k=0\}} b_0 b_0^\dagger = \frac{g\mu_B}{V} n_u.$$

La dépendance temporelle d'un tel système suit alors le diagramme de la 4.1(a) en régime linéaire.

Par analogie avec les spins paramagnétiques, on introduit deux temps de relaxation distincts : le temps de relaxation  $T_2 = 2/(\eta_0 + \eta_{sp})$  de la composante transverse et celui  $T_1 = 1/\eta_0$  de la composante longitudinale :

$$\frac{d}{dt} \overline{M_t}^2 = 2 \frac{M_s P_{\text{abs}}}{H + 4\pi(n_t - n_z)M_s + H_{\text{anis}}} - 2 \frac{\overline{M_t}^2}{T_2} \quad (4.4a)$$

$$\frac{d}{dt} (M_s - \overline{M_z}) = \frac{P_{\text{abs}}}{H + 4\pi(n_t - n_z)M_s + H_{\text{anis}}} - \frac{M_s - \overline{M_z}}{T_1}. \quad (4.4b)$$

Dans ce formalisme, seul le temps de relaxation  $T_1$  est proportionnel au paramètre microscopique  $\alpha$  introduit dans l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert. On remarque que l'inégalité ( $\|M\| \leq M_s$ ) se traduit par la relation  $T_2/2 \leq T_1$ , au moins pour de petits angles de précession. Nous reviendrons sur ce problème dans la section 4.3. Pour finir, on notera que contrairement aux spins paramagnétiques, la largeur de raie n'est pas liée directement à l'inhomogénéité du champ interne. Il n'est donc pas nécessaire d'appliquer un champ très homogène pour obtenir une largeur de raie étroite. En soignant l'état de surface d'un échantillon monocristallin, on peut minimiser la contribution des ondes de spin inhomogènes et obtenir ainsi un élargissement déterminé uniquement par le terme d'amortissement microscopique. Les matériaux ferromagnétiques sont donc des candidats idéaux pour être utilisés comme référence de fréquence. Le matériau le plus connu pour sa largeur de raie très étroite est le grenat d'Yttrium et de Fer,  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ .

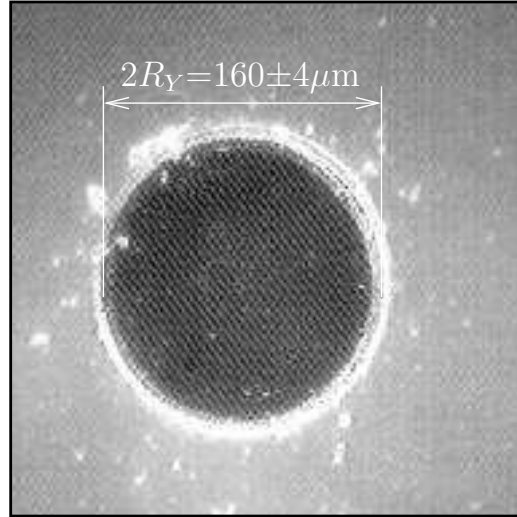


FIG. 4.2: **Micrographie du disque de YIG** obtenu par gravure ionique sèche aux ions  $Ar^+$  au travers d'un masque en résine photosensible.

Il est utilisé dans de nombreuses sources hyperfréquences (synthétiseurs ou diodes) pour asservir la porteuse à une résonance FMR. Le YIG est un isolant ferromagnétique dont la température de Curie  $T_C = 559$  K [45]. Son aimantation à saturation à température ambiante  $M_S(T = 285K) = 144$  emu/cm<sup>3</sup>. En utilisant des sphères ultra-polies, il est possible d'obtenir avec le YIG des facteurs de qualité de plus de  $10^4$ .

## 4.2 Spectre de résonance en aimantation perpendiculaire

Nous allons maintenant revenir au problème plus général de la dynamique linéaire de l'aimantation d'un échantillon magnétique, en autorisant une réponse non uniforme  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$  de l'aimantation du système. Ce problème fut traité pour la première fois par L. R. Walker [89] en 1957 pour expliquer l'observation expérimentale dans des sphères de grenat magnétique d'une série de résonances en plus du mode uniforme prédit par la formule de Kittel [90]. Il émit l'hypothèse que les multiples résonances observées correspondaient à des modes propres de modulation de l'aimantation, c'est-à-dire à des harmoniques spatiales du mode uniforme de Kittel, dont les longueurs d'ondes seraient comparables à la taille de l'échantillon. Pour des échantillons suffisamment petits de sorte que tout effet de propagation puisse être négligé<sup>1</sup> et par ailleurs suffisamment grands de sorte que l'interaction d'échange ne joue aucun rôle, ces modes de modulation de l'aimantation doivent être uniquement gouvernés par les interactions magnétostatiques dans l'échantillon. On parlera alors dans ce cas de *modes magnétostatiques* ou bien de *régime magnétostatique* d'excitation de l'aimantation. Pour des longueurs d'ondes plus petites (typiquement sub-microniques) il faut aussi tenir compte de l'interaction d'échange, on parlera de *régime dipôle-échange*. Le modèle de Walker fut ensuite étendu au cas de films minces infinis en

<sup>1</sup>C'est-à-dire suffisamment petits par rapport à la longueur d'onde  $\lambda_{em}$  des ondes électromagnétiques dans le vide aux fréquences utilisées pour exciter la RFM. Typiquement  $\lambda_{em} = 2\pi c/\omega \gtrsim 10$  cm pour  $\omega = 10$  GHz.

aimantation perpendiculaire ou planaire par R. W. Damon et J. R. Eshbach [13] puis à celui des disques en aimantation perpendiculaire par R. W. Damon et H. Van de Vaart [14, 15].

La première expérience à mener pour démontrer la validité de la détection mécanique de la RFM consiste à enregistrer le spectre de modes magnétostatiques *intrinsèque* de l'échantillon. L'échantillon est un disque de YIG épais de  $S=4,75 \mu\text{m}$ , lithographié sous la forme d'un disque le plus parfait possible d'un diamètre  $D=2R=160 \mu\text{m}$ . Le film duquel est issu l'échantillon fut réalisé au Laboratoire du Magnétisme de Bretagne par J. Ben Youssef en utilisant une technique d'épitaxie en phase liquide [49] sur un substrat de GGG (grenat de Gadolinium et de Gallium,  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ , un grenat non magnétique dont le paramètre de maille dans le plan de croissance est compatible avec celui du YIG). Ce film est orienté selon la direction  $\langle 111 \rangle$  qui correspond à un axe de facile aimantation avec un champ effectif d'anisotropie  $H_a = 58 \text{ G}$ .

Nous avons placé notre sonde mécanique à une distance  $\ell = 100 \mu\text{m}$  au dessus du centre de l'échantillon. On s'assure ainsi du fait que la perturbation de l'échantillon par le champ de fuite de la pointe reste négligeable. Pour cette distance, la pointe magnétique génère en effet au niveau de l'échantillon un champ  $H_{\text{bar}} = 5,8 \text{ Oe}$  quasiment homogène dans le plan de la couche et un gradient de champ  $\partial_z H_{\text{bar}} = 0,16 \text{ Oe}/\mu\text{m}$ , à comparer au champ extérieur de l'ordre de  $5 \text{ kOe}$  nécessaire à l'excitation de la RFM. L'échantillon est irradié de façon continue à une fréquence  $f_0 = 10,468 \text{ GHz}$  par le champ micro-onde  $\mathbf{h}$  généré par le résonateur accordé, dont l'amplitude est modulée de 100% à une fréquence  $f_m$  asservie sur la fréquence propre du levier  $f_c(H_{\text{ext}})$ .

Lorsque le champ extérieur  $H_{\text{ext}}$  est balayé vers les champs faibles, on observe une résonance principale pour  $H_{\text{ext}} = 5,3216 \text{ kOe}$ , suivie d'une série de plus de 50 harmoniques à plus bas champs. Le spectre ainsi enregistré est représenté sur la figure(4.3).

Afin de résoudre le spectre dans son intégralité, la puissance de l'excitation micro-onde a été graduellement augmentée au cours du balayage, d'une puissance allant de  $P_{\text{in}} = -16 \text{ dBm}$  pour le mode principal, jusqu'à  $P_{\text{in}} = 4 \text{ dBm}$  pour les modes d'indices les plus élevés. Les intensités des modes telles qu'elles sont représentées sur la FIG.4.3 ont bien sûr été renormalisées afin de bien rendre compte des intensités relatives entre modes.

Les résonances observées sont attribuées à l'excitation d'ondes magnétostatiques stationnaires le long du diamètre de l'échantillon ( $\theta_k = \pi/2$ ). Nous avons indexé ces modes à l'aide du modèle de Damon et Van de Vaart [15]. On montre qu'il existe une solution en ondes transverses propagatives (*i.e.* avec un vecteur d'onde  $k$  réel) dites Ondes Magnétostatiques Avancantes de Volume (MSFVW pour *Magnetostatic Forward Volume Waves*) dont le domaine d'existence en fréquence et en champ est gouverné par le signe de la perméabilité  $\mu = 1 + 4\pi\chi$  :  $k$  est réel pour  $1 + 4\pi\chi < 0$  c'est-à-dire pour

$$\omega_H \equiv \gamma H_i < \omega < \gamma \sqrt{H_i B_i} = \sqrt{\omega_H(\omega_H + \omega_M)} \equiv \omega_{\perp}. \quad (4.5)$$

Ce sont ces ondes propagatives qui vont pouvoir interférer constructivement, sous certaines conditions que nous allons définir, et ainsi donner lieu à l'absorption résonante d'une excitation micro-onde. La condition (4.5) définit donc le domaine pour lequel l'excitation de modes magnétostatiques va être possible en aimantation perpendiculaire. La solution générale pour le potentiel magnétostatique s'écrit alors en terme de fonctions de Bessel de première espèce  $J_\nu(x)$

$$\phi(r) \propto \int d\mathbf{k} \sum_{\nu} A_{\nu}(\mathbf{k}) J_{\nu}(k_t r) \exp(i\nu\varphi) \cos(k_z z), \quad (4.6)$$

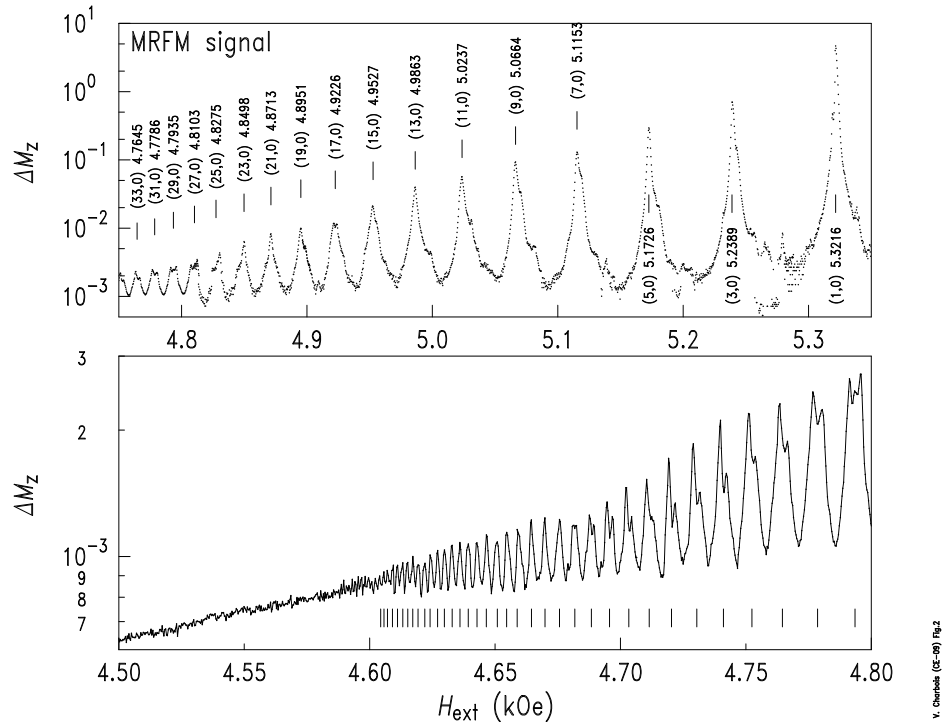


FIG. 4.3: **Spectre complet de MSFVW** détecté mécaniquement en utilisant une modulation de source de 100% asservie sur la fréquence propre du levier, pour une distance sonde-échantillon  $\ell = 100 \mu\text{m}$ . La puissance de l'excitation micro-onde a été graduellement augmentée au cours du balayage vers les bas champs et les intensités représentées sur cette figure ont été renormalisées en conséquence. L'absorption large bande en dehors du domaine d'excitation des MSFVW ( $H_{\text{ext}} < \sqrt{H_i B_i}$ ) est attribuée à l'excitation de phonons par les ondes magnétostatiques [17].

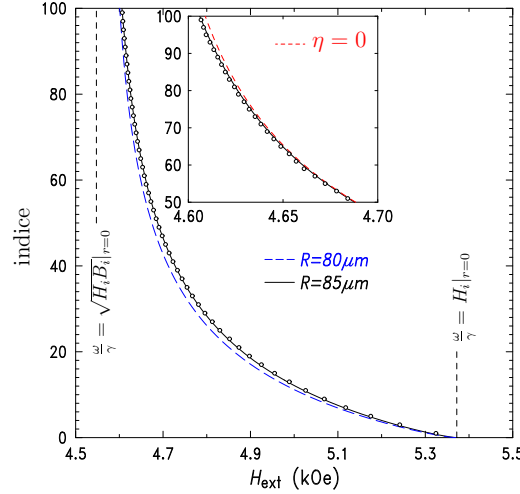


FIG. 4.4: **Diagramme indice-champ** : indice  $n$  des modes magnétostatiques détectés mécaniquement pour une distance sonde-échantillon  $\ell = 100\mu\text{m}$  en fonction du champ extérieur. Les cercles représentent la position des modes telle que mesurée sur la FIG.4.3. La ligne en trait plein représente la prédiction du modèle de Walker en tenant à la fois compte de l'inhomogénéité du champ interne dû à la taille finie de l'échantillon et au champ de fuite de la sonde, pour un disque de rayon  $R = 85\mu\text{m}$ . La ligne en trait pointillé est la prédiction pour un rayon  $R = 80\mu\text{m}$ . L'agrandissement en insère illustre l'importance de l'échange dans la dispersion des modes de petites longueur d'onde. Le comportement observé s'écarte de la prédiction en l'absence d'échange ( $\eta \equiv 0$ ) [11].

où le vecteur d'onde radial  $k_t$  est donné par la relation de dispersion des MSFVW

$$k_t = \frac{2}{S} \sqrt{\frac{-1}{\mu}} \arctan \left( \sqrt{\frac{-1}{\mu}} \right), \quad (4.7)$$

avec  $\mu$  tendant vers

$$\mu_0 = \frac{B_i H_i - \omega^2 / \gamma^2}{H_i^2 - \omega^2 / \gamma^2}, \quad (4.8)$$

en l'absence d'échange. Dans un échantillon de taille fini tel que celui-ci, ces ondes sont excitées au niveau d'un disque de rayon  $r_1$  sur lequel la condition  $\omega / \gamma = H_i(r_1)$  est vérifiée. L'onde ainsi excitée est ensuite accélérée vers le centre de l'échantillon par le gradient de champ interne et se réfléchit sur le diamètre opposé. Lorsque la superposition des ondes incidentes et réfléchies donne lieu à une interférence constructive, un mode propre est excité ce qui se traduit par l'absorption résonante de l'énergie du champ micro-onde et une diminution  $\Delta M_z$  de l'aimantation longitudinale que l'on détecte mécaniquement.

A chaque mode est associé un indice  $n$  défini par la condition de résonance

$$\int_0^{r_1} k_t(u, H_{0n}) du = n \times \pi \quad n \in \mathbb{N}, \quad (4.9)$$

qui correspond au nombre d'ondes stationnaires excitées le long du diamètre du disque. La quantité  $(n - 1)$  peut aussi être vue comme le nombre de nœuds de l'aimantation dynamique  $m(t)$  le long du diamètre. Pour un champ micro-onde  $\mathbf{h}$  uniforme, seule l'excitation de modes d'indices impairs est autorisée si la symétrie cylindrique du système est conservée. Ainsi l'absence de modes pairs (on observe une très faible contribution du mode

$n = 2$  sur le spectre de la FIG.4.3) est une signature du fait que la pointe est exactement alignée avec l'axe de l'échantillon, conservant ainsi au système sa géométrie cylindrique.

Nous avons représenté la dépendance de l'indice  $n$  en fonction du champ externe sur le diagramme indice-champ de la FIG.4.4. Sur cette même figure, nous avons tracé les prédictions du modèle de Walker en tenant compte de l'inhomogénéité du champ interne due à la fois à la taille finie de l'échantillon et au champ de fuite de la pointe magnétique. Les calculs ont été effectués en évaluant la condition de résonance (4.9) dans le plan médian du disque ( $z = S/2$ ) en prenant pour la pointe magnétique les paramètres pour le disque de YIG une aimantation à saturation  $M_S(T = 285K) = 144 \text{ emu/cm}^3$ . Nous avons pris comme seul paramètre ajustable le rayon du disque. On constate que le meilleur accord avec les résultats expérimentaux correspond à  $R_{\text{eff}} = 85 \text{ } \mu\text{m}$ . Cette valeur se situe au-delà de la taille admise pour notre échantillon,  $R = 80 \pm 4 \text{ } \mu\text{m}$ . Cette différence est attribuée à notre utilisation du modèle analytique de Joseph et Schlömann [30] pour modéliser le champ interne du disque. Ce modèle suppose au premier ordre une aimantation à saturation uniforme dans tout l'échantillon et néglige donc la rotation de l'aimantation près des bords, ce qui revient à sur-estimer le facteur démagnétisant  $n_{zz}$  et donc le champ de résonance. Cette différence est compensée par une augmentation de  $R_{\text{eff}}$  au niveau du fit.

Nous avons jusqu'à présent négligé l'interaction d'échange. Cependant elle intervient dans la dispersion des modes de longueur d'onde comparable à la longueur d'échange  $\lambda_{\text{ech}}$ , qui dans le YIG est de l'ordre du micron [17]. On s'attend donc à ce que la dépendance en champ de l'indice  $n$  soit influencée par l'échange pour ces modes de petites longueurs d'onde. C'est effectivement le cas comme le montre l'insère de la FIG.4.4 où nous avons représenté en pointillés la prédiction d'un modèle qui ne tient pas compte de l'échange et qui surestime d'autant plus le champ de résonance que l'indice du mode est élevé. La ligne en trait continu prend quant à elle en compte les effets d'échange au premier ordre en remplaçant  $\omega_H \rightarrow \omega_H + \eta k^2$  dans l'équation de la perméabilité, où  $\eta = D/\hbar$  avec  $D = 0.93 \times 10^{-28} \text{ erg.cm}^2$  la constante d'échange du YIG.

La dernière caractéristique remarquable du spectre de la FIG.4.3 est l'absorption continue à bas champ ( $H_{\text{ext}} \lesssim 4,577 \text{ kOe}$ ), en dehors de la région d'excitation des modes magnétostatiques définie par (4.5). Cette absorption large bande fut pour la première fois décrite par Eshbach [17] comme étant associée à l'excitation de *modes magnéto-élastiques* couplés aux ondes de spins d'indices  $n$  élevés localisées sur les bords de l'échantillon, pour des champ internes proches de la limite  $\omega/\gamma = \sqrt{H_i B_i}$ . Il existe en effet un couplage magnéto-élastique entre les ondes magnétostatiques et les phonons, qui est maximum dans la région  $\omega \approx \gamma \sqrt{H_i B_i}$  [33, 71]. Dans ce cas, l'énergie transmise au MSFVW par le champ micro-onde est immédiatement transféré aux phonons. Pour pouvoir observer ces modes magnétostatiques « de bord » dans la région  $\omega \approx \gamma \sqrt{H_i B_i}$ , il convient d'augmenter la puissance du champ micro-onde jusqu'à saturer le couplage magnéto-élastique [71].

### 4.3 Mesures de relaxation ferromagnétique

La méthode adéquate pour obtenir le temps de relaxation intrinsèque d'un matériau ferromagnétique consiste à mesurer directement la composante longitudinale  $M_z$ . La quantité  $M_z$  relaxe en un temps caractéristique  $T_1$ , qui caractérise la perte nette d'énergie du système magnétique au profit de son environnement, et dont la mesure est donc insensible

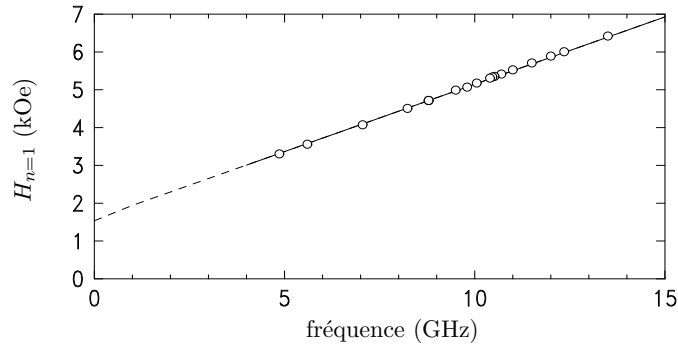


FIG. 4.5: **Dépendance en fréquence du champ de résonance du mode principal entre 5 et 13,5 GHz.** La mesure expérimentale est en accord quantitatif avec la prédiction du modèle de Walker, nous assurant ainsi du fait que l'échantillon est toujours saturé à 5 GHz pour un champ extérieur de 3 kOe.

aux effets de décohérence spatiale. L'importance d'une mesure de  $M_z$  pour caractériser la relaxation ferromagnétique est connue de longue date et fut tout d'abord implémentée sous forme d'une mesure inductive [9, 19], ou magnétostrictive [29]. Les limitations en sensibilité de ces techniques, liées au fait que la diminution  $\Delta M_z = M_S - M_z$  de l'aimantation longitudinale à la résonance soit une quantité du second ordre en angle de précession,  $\Delta M_z \propto \theta^2$ , rend ces deux approches inadaptées à la caractérisation d'échantillons microscopiques individuels. Nous avons en revanche montré que la détection mécanique de la RFM possède la sensibilité requise pour effectuer cette mesure, et nous allons détailler dans les paragraphes qui suivent les trois expériences qui nous ont permis de caractériser la relaxation ferromagnétique dans notre échantillon de YIG.

#### 4.3.1 Dépendance en fréquence de la largeur de raie

La façon standard d'accéder au paramètre de Gilbert  $\alpha$  consiste à mesurer la dépendance en fréquence d'excitation  $\omega/2\pi$  de la largeur de raie  $\Delta H$  [62] dans le régime linéaire. Si nous supposons qu' $\alpha$  est indépendant de la fréquence, l'équation (4.3) prédit en effet une dépendance linéaire de  $\Delta H(\omega)$  en  $\omega$ , dont la pente est liée de façon très simple au paramètre de Gilbert.

La principale difficulté expérimentale concernant cette mesure de  $\Delta H(\omega)$  est liée au fait que nous utilisons un résonateur micro-onde. La sensibilité de la détection de l'aimantation dynamique  $m$  par la mesure de la puissance réfléchie  $P_{\text{ref}} \propto \chi'' h^2 \propto m^2$  n'est donc suffisante que pour des fréquences d'excitation très proches de la fréquence propre  $f_0$  du résonateur. Pour des fréquences sensiblement différentes de  $f_0$  le signal de RFM est masqué par la puissance réfléchie au niveau du couplage capacitif avec le résonateur désaccordé et la perte du Q de la ligne en méandre. Nous avons cependant vu que dans le régime linéaire d'excitation de la RFM, les largeurs de raie enregistrées par une mesure de susceptibilité ou par la détection mécanique étaient équivalentes, comme le prévoient d'ailleurs les équations de Bloch-Bloembergen dans la limite  $h \ll h_{\text{sat}}$ . Nous avons donc utilisé notre détection mécanique pour déterminer l'évolution de  $\Delta H$  pour des fréquences d'excitations comprises entre 5 et 13,5 GHz. Les champs de résonance correspondant sont compris entre 3,2 kOe et 6,4 kOe (FIG.4.5). La prédiction de la dépendance en fréquence du champ de résonance  $H_{n=1}$  par le modèle de Walker pour un échantillon saturé est en accord



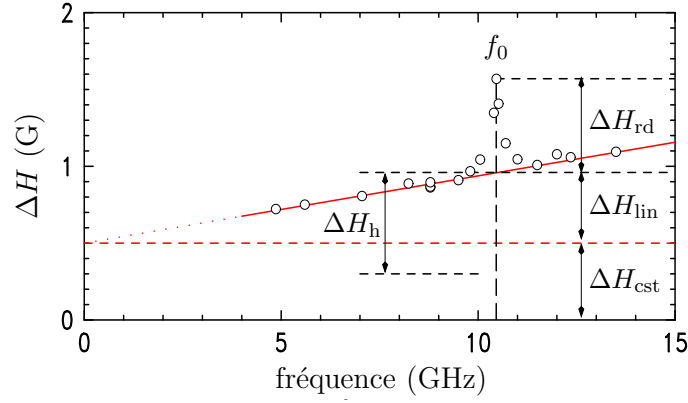


FIG. 4.6: **Dépendance en fréquence de la largeur de raie du mode principal entre 5 et 13,5 GHz**, déduite d'un ajustement Lorentzien du signal de RFM détecté mécaniquement dans le régime de couplage faible ( $\ell = 100 \mu\text{m}$ ). On a représenté les différentes contributions à l'élargissement [35, 36].

quantitatif avec la mesure expérimentale. Ce résultat nous assure du fait que, quelque soit la fréquence d'excitation, notre échantillon de YIG se trouve toujours dans l'état saturé et qu'il n'y aura donc pas d'effets d'élargissement dus à la présence d'inhomogénéités de l'aimantation statique (la largeur de raie augmente à basse fréquence, et donc à bas champ, à cause de la formation de domaines magnétiques [77]).

Le résultat de la mesure de  $\Delta H(\omega)$  est représenté sur la figure (FIG.4.6). Trois contributions distinctes à la largeur de raie du mode  $n = 1$  peuvent être extraites de la FIG.4.6.

Tout d'abord, il existe un élargissement additionnel  $\Delta H_{\text{rd}} = 0,62 \text{ Oe}$  à la fréquence propre du résonateur micro-onde  $f_0 = 10,47 \text{ GHz}$ . Cet effet singulier est attribué à l'amortissement radiatif, un effet caractéristique des mesures en cavités résonantes d'échantillons possédant une haute susceptibilité  $\chi''$  [73]. Il faut alors considérer l'effet de contre-réaction du champ rayonné par l'aimantation de l'échantillon sur les propriétés de la cavité et donc sur l'intensité du champ micro-onde  $\mathbf{h}$ . Une façon de concevoir cet amortissement radiatif consiste à dire que lorsque l'échantillon entre en résonance, il perturbe les propriétés de la cavité, qui se désaccorde et rayonne donc un champ  $\mathbf{h}$  plus faible. On peut exprimer l'élargissement de la largeur de raie intrinsèque  $\Delta H_h$  en fonction des caractéristiques de l'échantillon et de la cavité résonante :

$$\Delta H = \Delta H_h (1 + 4\pi Q_L \eta \chi''). \quad (4.10)$$

Cet effet sera d'autant plus critique que la partie imaginaire  $\chi''$  de la susceptibilité de l'échantillon sera grande (échantillon très perturbateur) et que les facteurs de qualité  $Q_L$  et de remplissage  $\eta$  de la cavité seront élevés (cavité très sensible). Cet effet ne se manifeste donc que pour des fréquences très proches de la fréquence propre de la cavité, comme l'illustre le caractère abrupte de l'augmentation de  $\Delta H$  en  $f = f_0$ .

Le second effet évident sur la FIG.4.6 est la dépendance linéaire en fréquence  $\Delta H_{\text{lin}} \approx 0,043 \text{ Oe/GHz}$ . Une partie de cette linéarité en fréquence de la largeur de raie est bien connue pour le YIG comme étant due au processus microscopiques de Kasuya Le-Craw [31, 47] (collision d'un magnon uniforme et d'un phonon pour former un magnon à  $k \neq 0$ ) qui ne dépend que des propriétés du matériau et qui contribue dans le cas du YIG pour  $\Delta H_{\text{KL}} = 0,02 \text{ Oe/GHz}$ . Nous attribuons le reste de la dépendance linéaire au processus de

diffusion inélastique des magnons uniformes sur des impuretés de terres rares présentes à l'état de traces dans notre échantillon et qui contribueraient donc ici pour  $\Delta H_{\text{imp}} = 0,023$  Oe/GHz<sup>2</sup>. Pour vérifier cette hypothèse, il aurait fallu effectuer une étude en température de la largeur de raie, les processus de relaxation dûs aux impuretés magnétiques étant caractérisés par des pics à basse température [77]. Notre dispositif expérimental ne permet cependant pas à l'heure actuelle de descendre en température.

Cette dépendance linéaire en fréquence peut être associée, comme nous l'avons mentionné plus haut, au coefficient d'amortissement de Gilbert dans la mesure où on le suppose indépendant de  $\omega$ . On en déduit alors une valeur de  $\alpha = 0,00038$  qui correspondrait à un temps de relaxation  $T_1 = 1/(\alpha\omega) = 126$  ns à 10,47 GHz.

Enfin, il existe une contribution  $\Delta H_{\text{cst}} = 0,50$  Oe indépendante de la fréquence d'excitation, qui donne une extrapolation non nulle de la largeur de raie à fréquence nulle dont on ne peut pas rendre compte dans le cadre du modèle de Landau-Gilbert. Deux effets distincts contribuent en général à  $\Delta H_{\text{cst}}$ , un élargissement homogène qui est associé au mécanisme de relaxation à deux magnons transmis par les imperfections de l'échantillon (rugosité de surface ou pores) et un élargissement inhomogène associé à des irrégularités dans la géométrie de l'échantillon. La mesure de  $\Delta H(\omega)$  ne permet cependant pas de déterminer les contributions relatives de ces deux effets à  $\Delta H_{\text{cst}}$ .

### 4.3.2 Modulation haute fréquence

La séparation entre les élargissements homogène (processus de relaxation) et inhomogène (dû par exemple à des irrégularités dans la géométrie de l'échantillon) à  $\Delta H$  peut être obtenue en réalisant une expérience de modulation haute fréquence de l'excitation de la RFM. Si le mode de résonance principal possède un temps de relaxation  $T_2$ , on s'attend en effet à ce que pour des fréquences de modulation de l'ordre de  $1/T_2$  la dynamique des spins ne puisse plus suivre celle de l'excitation. En d'autres termes, on attend une diminution de l'intensité du signal de RFM pour des fréquences de modulation de l'ordre de  $1/T_2$ . Cette méthode de caractérisation de la relaxation ferromagnétique fut proposée en 1960 par Flechter, LeCraw et Spencer [19], et leur permit d'obtenir la contribution intrinsèque de l'ensemble des processus de relaxation à l'élargissement de la largeur de raie.

Utiliser une technique de modulation haute fréquence demande toutefois une modification du protocole expérimental utilisé jusqu'ici. La technique de modulation harmonique que nous utilisions jusqu'à présent fixait en effet la fréquence de modulation à la fréquence propre du levier,  $f_c \approx 3$  kHz, une fréquence bien inférieure à celles (de l'ordre du MHz) en principe nécessaires pour caractériser la relaxation. Aussi afin de pouvoir appliquer la méthode de Flechter *et al.*, nous avons utilisé une technique de modulation anharmonique du signal de RFM, s'inspirant d'une proposition de Bruland *et al.* [10] visant à améliorer les performances du MRFM. Le dispositif expérimental utilisé est schématisé sur la FIG.4.7. Nous avons combiné une modulation de source à une fréquence  $\omega_s$  arbitraire avec une modulation de fréquence à une fréquence  $\omega_f = \omega_s + \omega_c$ . Il existe alors une composante de Fourier non nulle du signal de RFM à la fréquence du levier, que l'on est

---

<sup>2</sup>Cette valeur illustre le degré de pureté du film de YIG, l'élargissement ne descendant pas en-dessous de 0,001 Oe/GHz pour les meilleurs échantillons mais pouvant atteindre plus de 10 Oe/GHz dans des échantillons impurs [22].



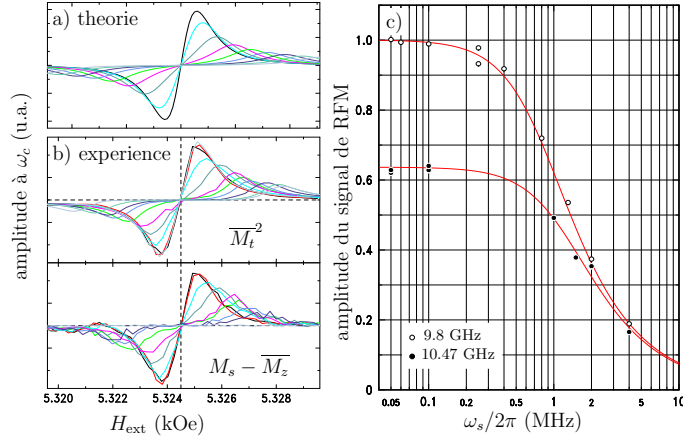


FIG. 4.8: **Modulation anharmonique de la RFM.** On a représenté la modification du signal de la détection anharmonique à  $\omega_c = \omega_f - \omega_s$  induite par l'augmentation de la fréquence de modulation de source, tel que prédit par la solution (4.11) de l'équation de Bloch-Bloembergen (a) et observé expérimentalement (b) à 10,47 GHz. (c) L'ajustement par ce modèle de la décroissance du signal pour  $\omega_s/2\pi \approx 1\text{ MHz}$  permet d'extraire un temps de relaxation transverse  $T_2 = 160\text{ ns}$ . Les données à 10,47 GHz ont été renormalisées par la largeur de raie afin d'illustrer l'effet du phénomène d'amortissement radiatif, qui est absent des données à 9,8 GHz. [36]

mesure en dehors de la fréquence propre du résonateur afin de nous affranchir de l'effet d'amortissement radiatif.

Nous avons représenté sur la FIG.4.8(a,b) les modifications de la raie de résonance induites par l'augmentation de la fréquence de modulation de source prédites par la solution (4.11) de l'équation de Bloch-Bloembergen et celles observées expérimentalement en mesurant  $\Delta M_z|_{\omega=\omega_c}$  et  $(\chi''h^2)|_{\omega=\omega_c}$  dans le régime de couplage faible ( $\ell = 100\text{ }\mu\text{m}$ ) à la fréquence propre du résonateur micro-onde  $f_0 = 10,47\text{ GHz}$ . Nous avons utilisé une modulation de source de 100% et une amplitude pic à pic de 300 kHz pour la modulation de fréquence, suffisamment petite pour éviter les effets de distorsion de la raie de résonance dus à l'amplitude de modulation. La puissance  $P_{\text{in}}$  est fixée à  $-27,5\text{ dBm}$ , ce qui correspond à un champ micro-onde d'une amplitude de 2,5 mG au niveau de l'échantillon.

Comme nous venons de le faire remarquer, les comportements de  $\Delta M_z|_{\omega=\omega_c}$  et de  $(\chi''h^2)|_{\omega=\omega_c}$  sont identiques à cause du mélange des contributions de  $T_1$  et  $T_2$  induit par cette technique de modulation anharmonique.

Afin de bien mettre en évidence l'influence du phénomène d'amortissement radiatif, nous avons répété cette expérience à une fréquence micro-onde  $f = 9,8\text{ GHz}$ , c'est-à-dire avec un résonateur suffisamment désaccordé pour que l'on puisse négliger  $\Delta H_{\text{rd}}$  (FIG.4.6).

La décroissance de l'intensité du signal de RFM dans les deux cas est représentée sur la FIG.4.8(c). Un ajustement des données à 9,8 GHz conduit à un temps de relaxation transverse  $T_2 = 162 \pm 10\text{ ns}$  correspondant à un élargissement homogène  $\Delta H_h = 0,70 \pm 0,05\text{ Oe}$ . Le même modèle conduit à un élargissement de 1,1 Oe à la fréquence propre du résonateur, c'est-à-dire en présence du phénomène d'amortissement radiatif.

Nous sommes donc désormais en mesure de détailler les différentes contributions à la largeur de raie en régime linéaire représentées sur la FIG.4.6. La largeur de raie  $\Delta H = 1,57$

<i>Notation</i>	<i>Processus</i>	$\Delta H$	<i>Dépendance en fréquence</i>
$\Delta H_{\text{pit}}$	2-magnons	0.2 Oe	frequency independent
$\Delta H_{\text{KL}}$	Kasuya-Le Craw	0.2 Oe	Linear : 0.02 Oe/GHz
$\Delta H_{\text{imp}}$	Rare earth impurities (trace amount)	0.25 Oe	Generally linear
$\Delta H_{\text{rd}}$	Radiation Damping	0.62 Oe	$f_0 = 10.47$ GHz
$\Delta H_{\text{inh}}$	Inhomogeneous	0.3 Oe	frequency dependent
$\Delta H$		1.57 Oe	

TAB. 4.1: **Contributions à la largeur de raie à 10,47 GHz du mode principal du disque de YIG** déduites des mesure de la dépendance en fréquence de  $\Delta H$  et d'expériences de modulation anharmonique haute-fréquence.

Oe observée à 10,47 GHz se décompose en

1. une contribution extrinsèque qui est la somme de l'élargissement  $\Delta H_{\text{rd}} = 0,62$  Oe dû à l'amortissement radiatif et de l'élargissement inhomogène  $\Delta H_{\text{inh}} = 0,3$  Oe dû aux irrégularités de la géométrie de l'échantillon.
2. une contribution des processus de relaxation qui est la somme d'une relaxation intrinsèque  $\Delta H_{\text{lin}} = 0,45$  Oe uniquement liée aux propriétés physiques de l'échantillon (processus de Kasuya-LeCraw et relaxation due aux impuretés de terre rares), et d'une diffusion élastique des magnons uniformes par les défauts de surface  $\Delta H_{\text{pit}} = 0,2$  Oe (processus à 2 magnons).

Toutes ces contributions sont résumées dans la Table (4.1). Trois commentaires importants peuvent être faits au sujet de cette analyse :

- a ) Concernant les mesures effectuées à la fréquence propre  $f_0 = 10,47$  GHz du résonateur micro-onde, l'amplitude de l'élargissement dû à l'amortissement radiatif,  $\Delta H_{\text{rd}}$ , est du même ordre que l'élargissement homogène  $\Delta H_h$ . L'expression (4.10) suggère donc que pour notre résonateur, le facteur de couplage  $b \equiv 4\pi Q_L \eta \chi''_{\text{res}}$  soit très proche de 1. En utilisant les valeurs de  $Q_L = 150$  et  $\chi''_{\text{res}} = M_S / \Delta H_h = 221$  on en déduit un facteur de remplissage  $\eta = 2,4 \times 10^{-6}$ . Ce résultat est utilisé pour corriger la calibration du champ micro-onde  $h$ . On peut en effet montrer [73] que l'amortissement radiatif s'accompagne d'une diminution du champ micro-onde rayonné par la cavité dans un rapport

$$\frac{h_{\text{rd}}}{h} = \sqrt{\frac{1}{1+b}} = 0,7 \quad (4.13)$$

L'amortissement radiatif est donc responsable d'une diminution de 30% de l'intensité du champ micro-onde.

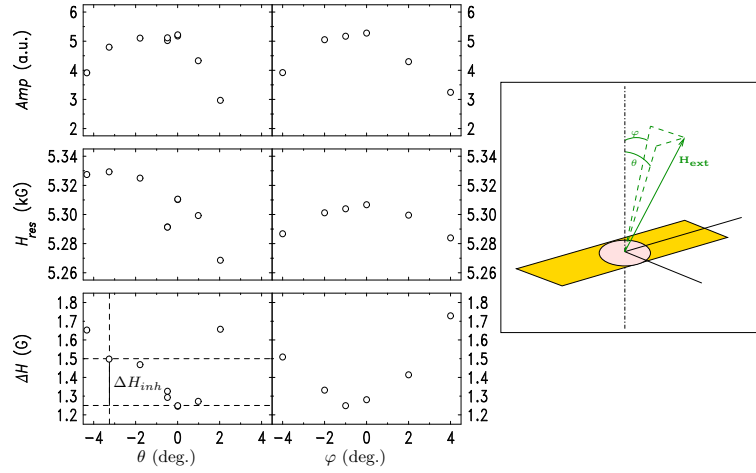


FIG. 4.9: **Influence de l'orientation de l'échantillon par rapport au champ extérieur.** La ligne verticale en pointillé correspond à la position à laquelle furent effectuées les mesures de relaxation présentées précédemment. On constate que les mesures ont été effectuées avec une erreur d'alignement  $\delta\theta = 3$  degrés sur l'angle azimutal, responsable d'un élargissement inhomogène  $\Delta H_{inh} = 0,25$  Oe cohérent avec celui déduit des mesures de relaxation.

- b ) La faible contribution du processus à deux magnons à l'élargissement homogène  $\Delta H_{pit} = 0,2$  Oe (correspondant à un temps de relaxation spin-spin  $T_s = 570$  ns) est attendu dans le cas d'un disque en aimantation perpendiculaire. La fréquence de résonance du mode uniforme d'un disque infiniment fin aimanté perpendiculairement se situe au plus bas de la bande de magnons, à une fréquence pour laquelle le nombre de magnons dégénérés est nul (cf. Fig 4.1b). Dans la limite du disque infiniment fin, il n'y a donc pas de contribution du processus à deux magnons. Notre estimation de  $\Delta H_{pit}$  est d'ailleurs en accord avec les calculs de Hurben et Patton du processus à 2 magnons dans des disques de rapport d'aspect fini [26].
- c ) L'élargissement inhomogène  $\Delta H_{inh} = 0,3$  Oe s'explique presque entièrement comme étant dû à une erreur d'alignement de 3 degrés de l'axe du disque par rapport à la direction du champ statique  $H_{ext}$ , comme le montrent les résultats d'une étude de la dépendance angulaire de  $\Delta H$ ,  $H_{n=1}$  et de l'amplitude du signal de RFM présenté sur la FIG.4.9.

### 4.3.3 Mesure quantitative de $\Delta M_z(\ell)$

Les deux expériences que nous venons de décrire nous ont permis de détailler les différentes contributions à la largeur de raie de notre échantillon. Nous avons alors déduit le temps de relaxation transverse  $T_2$  de l'élargissement homogène  $\Delta H_h = 2/(\gamma T_2)$ . Mais afin de complètement caractériser la relaxation ferromagnétique, il nous reste à évaluer le temps de relaxation longitudinal  $T_1$ , qui représente le taux de transfert d'énergie du système de spins aux vibrations du réseau cristallin<sup>4</sup>. La mesure du  $T_1$  est cependant

<sup>4</sup>Dans le cas d'un échantillon métallique, il faudrait en plus tenir compte du flux d'énergie magnétique vers les degrés de liberté des électrons de conduction.

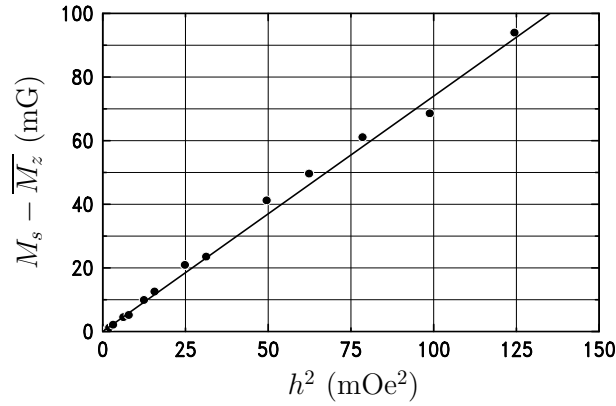


FIG. 4.10: **Dépendance en puissance d'excitation micro-onde de la composante longitudinale de l'aimantation à 9,8 GHz.** Les données correspondent à une mesure quantitative de  $M_S - \overline{M_z}$ , prenant en compte le profil non uniforme de la précession dans l'échantillon. La régression linéaire donne une pente  $(M_S - \overline{M_z})/h^2 = 740 \text{ G}^{-1}$  qui correspond à un  $T_1 = 106 \text{ ns}$  pour le  $T_2 = 162 \text{ ns}$  tel que déterminé précédemment. [36]

délicate dans les matériaux ferromagnétiques. On ne peut pas par exemple utiliser les mêmes techniques de résonance magnétique pulsée ou de saturation telles que celles qui sont couramment employées en RMN ou en RPE<sup>5</sup>, à cause des effets non linéaires propres à la RFM et qui limitent les angles de précession à des valeurs de quelques degrés. De plus, une complication supplémentaire propre à la détection mécanique vient du fait déjà mentionné que nous utilisons un détecteur à bande passante très étroite, ce qui nous empêche d'appliquer la technique de modulation haute fréquence de Flechter *et al.* à une mesure du  $T_1$ .

C'est pourquoi nous proposons une nouvelle méthode pour accéder au  $T_1$ , qui se base sur la possibilité d'effectuer une *mesure quantitative* de la diminution moyenne  $\Delta M_z = M_S - \overline{M_z}$  de l'aimantation longitudinale induite par l'excitation d'une résonance ferromagnétique, en utilisant la détection mécanique. Cette quantité peut être en effet reliée au temps de relaxation par l'expression suivante :

$$T_1 P_{\text{abs}} = \int_{V_s} \{M_S - M_z\} \{H(r) - 4\pi n_z(r) M_S\} dv \quad (4.14)$$

qui n'est rien d'autre de la conservation de l'énergie totale du système. Le membre de droite représente l'énergie  $\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{eff}}$  absorbée par le système magnétique et le membre de gauche l'énergie transférée aux phonons en un temps  $T_1$ . Notons que la relation (4.14) est très générale et décrit n'importe quel système magnétique dès lors que l'on considère un couplage avec un environnement extérieur caractérisé par un temps de relaxation  $T_1$ . La puissance micro-onde  $P_{\text{abs}}$  absorbée par l'échantillon s'exprime en fonction de la partie imaginaire  $\chi''$  de la susceptibilité :

$$P_{\text{abs}} = -\Im \{ \mathbf{M} \cdot \dot{\mathbf{h}} \} \quad (4.15)$$

$$= \omega \chi'' h^2. \quad (4.16)$$

<sup>5</sup>C'est cet effet que nous avons utilisé pour calibrer le champ micro-onde généré par le résonateur avec un échantillon de DPPH.

Exactement à la résonance,  $\omega = \gamma H_{\text{eff}}$ , de sorte qu'au premier ordre, dans le cadre du modèle de BB :

$$T_1 \approx \frac{M_S - \overline{M_z}}{\gamma^2 h^2 T_2}, \quad (4.17)$$

avec

$$\Delta \overline{M_z} = M_s - \int_{V_s} M_z(r) dv \quad (4.18)$$

$$= 0,33 \times \Delta M_z|_{r=0} \quad \text{pour } n=1, \quad (4.19)$$

la moyenne spatiale de l'aimantation longitudinale. La formule (4.17) prédit donc une dépendance linéaire de  $\Delta M_z$  en puissance du champ micro-onde  $h^2$ , dont la pente permet d'extraire le temps de relaxation longitudinal. Aussi, afin d'utiliser ce résultat, nous devons connaître de façon la plus exacte possible l'intensité  $h$  du champ micro-onde rayonné par le résonateur ainsi que la valeur de  $\overline{M_z}$ . Pour ce faire, la valeur de  $h$  est déterminée à partir de la calibration du résonateur sur la mesure du champ de saturation de la RPE d'une particule de DPPH. Quant à la valeur de  $M_S - \overline{M_z}$ , elle est évaluée à partir de l'article en annexe sur les mesures quantitatives [56]. Une évaluation correcte doit tenir compte de l'inhomogénéité de la précession de l'aimantation associée à la taille finie de notre échantillon [56].

La FIG.4.10 présente le résultat de cette mesure quantitative de  $\overline{M_z}(h^2)$ . Nous observons bien un accroissement linéaire de  $\Delta M_z = M_S - \overline{M_z}$  avec le carré de l'intensité  $h$  du champ micro-onde, comme prédit par l'EQU.4.14. Une régression linéaire des données expérimentales donne une pente  $(M_S - \overline{M_z})/h^2 = 740 \text{ G}^{-1}$  qui, pour la valeur de  $T_2 = 162 \pm 10 \text{ ns}$  déduite des mesures précédentes, correspond à un temps de relaxation longitudinal  $T_1 = 106 \pm 10 \text{ ns}$ . Cette valeur de  $T_1$  est en accord avec la valeur de  $1/(\gamma \Delta H_{\text{lin}}) = 126 \text{ ns}$  que nous avons déduit de l'étude de la dépendance en fréquence de la largeur de raie.

Notons enfin que le fait que nous obtenions un  $T_1$  de l'ordre de  $T_2/2$  est cohérent avec une relaxation dominée par un caractère visqueux (une relaxation de type Landau-Gilbert), c'est-à-dire une relaxation pour laquelle le processus à deux magnons ne joue pas un rôle prépondérant. On peut en effet montrer que dans le cas particulier  $T_1 = T_2/2$ , les équations de Bloch-Bloembergen sont équivalentes à celle de Landau-Gilbert.





# Chapitre 5

## Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre nous allons évoquer brièvement les perspectives et les travaux futurs en préparation.

### 5.1 Microscope cryogénique

Une extension du microscope vers les basses températures est en cours de réalisation. Ce volet est essentiel pour une compréhension plus fine des mécanismes physiques responsables de la relaxation. Un autre avantage est la diminution du bruit thermique et donc l'augmentation attendue de la sensibilité. Cette extension cryogénique offrira aussi la possibilité d'augmenter de façon significative la valeur du champ appliqué par l'ajout d'un aimant supraconducteur (7T). Une photographie de la tête de mesure est présentée en FIG.5.1. Le microscope utilise un dispositif interférométrique pour mesurer les déformations du levier. Des franges d'interférence se forment entre l'extrémité d'une fibre optique et la partie supérieure du levier à proximité. Une diode laser émet une lumière avec une très faible cohérence temporelle, ainsi seules les franges induites par la réflexion sur le levier sont visibles. Cette astuce permet de s'affranchir des problèmes de dilatation thermique dans la fibre optique. La sensibilité d'un tel dispositif est suffisante pour n'être limitée que par le bruit thermique du levier. L'autre originalité de ce microscope est d'être complètement amagnétique. Notamment il utilise des moteurs inertiels à base d'éléments piezoélectriques pour déplacer l'échantillon sur des distances millimétriques. La tête est placée dans un cryostat à flux continu lui-même inséré dans un cryostat à ultra-faible consommation d'hélium avec accès vertical à la température ambiante et un aimant supraconducteur 7 Tesla intégré. L'originalité de notre design est d'optimiser l'isolation des vibrations extérieures. De plus nous avons prévu un accès optique qui permettra de visualiser la phase d'approche in-situ au moyen d'un boroscope.

### 5.2 Injection de spins

En attendant la mise au point de ce nouvel instrument, nous poursuivons nos mesures de RFM sur des multicouches magnétiques conductrices. En effet dans tous les modèles théoriques récemment développés autour des processus dynamiques dans les microstructures magnétiques [2] les paramètres les plus importants à ajuster sont ceux qui régissent la relaxation ferromagnétique. Ces questions deviennent même cruciales lorsqu'il s'agit de

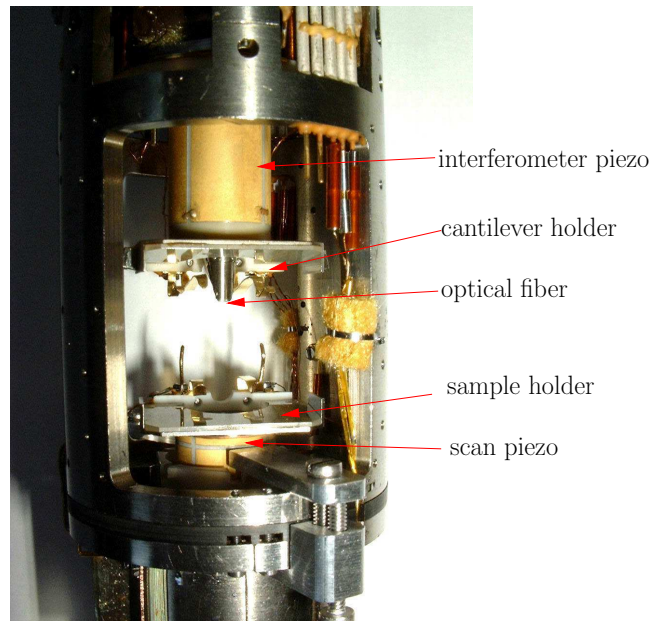


FIG. 5.1: **Photographie de l'AFM cryogénique** : La mesure des déformations du levier utilise un dispositif interférométrique.

comprendre les effets physiques à la base du fonctionnement des tricouches métalliques magnétiques présentant une variation géante de la magnétorésistance (GMR) où l'influence des spins hors d'équilibre peut devenir dominante dans les cas d'accumulation de spin [7]. Or nos connaissances actuelles sur ces coefficients d'amortissement dynamique se résument à des mesures standards de RFM sur des films minces (diffusion de Brillouin (BLS) ou article du groupe d'Heinrich [25]). Il n'y a, à l'heure actuelle, aucune mesure expérimentale de résonance ferromagnétique effectuée sur un nanopilier individuel. Il s'agit ici d'explorer le régime linéaire ce qui différencie cette technique des mesures dynamiques de retournement de l'aimantation (régime non-linéaire) où il existe de nombreux autres programmes de recherches qui se sont formés autour d'instruments originaux (Magnéto-optique, magnéto-résistance résolue en temps, etc...) Ces instruments mesurent un phénomène physique complexe dont le terme d'amortissement n'est pas relié de façon simple aux paramètres microscopiques de relaxation qui sont introduits dans l'équation du mouvement de l'aimantation (e.g. le facteur de Gilbert). Le but de notre projet est d'abord de caractériser à l'échelle individuelle le comportement dynamique d'une microstructure magnétique. Dans un deuxième temps, nous étudierons les variations du comportement lorsque la microstructure est traversée par un courant polarisé en spin.

Ce dernier phénomène suscite un vif intérêt dans la communauté scientifique à la fois expérimental [55, 21] et théorique [76, 7, 88]. Un calcul théorique publié par Slonczewski en 1996 [76] a montré qu'un courant polarisé en spin traversant une couche conductrice peut exercer un couple sur son moment magnétique et induire un renversement si la densité de courant est suffisante. La première expérience montrant l'existence d'un tel effet a été faite il y a quatre ans sur des nano-contacts de Co/Cu par Tsoi [81] puis Myers [55] et confirmée récemment par une collaboration Thalès/LPN/LMB [21]. Cette injection de spin permet de faire sauter un verrou technologique important dans les dispositifs actuels de MRAM (circuits mémoires magnétiques à accès aléatoire). Actuellement, la commutation magnétique de ces composants s'obtient par l'application d'une induction magnétique

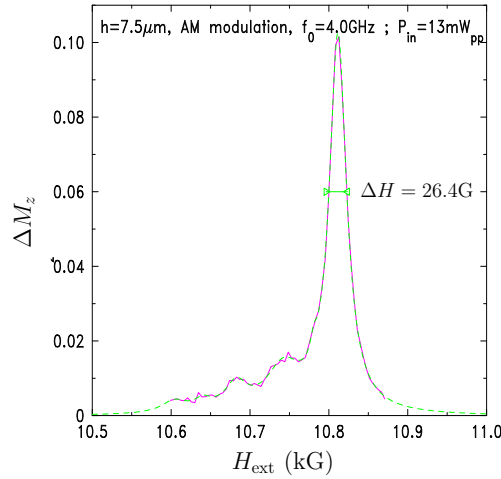


FIG. 5.2: **Disque de Permalloy** : Spectre de résonance ferromagnétique d'un disque de Py de diamètre  $10\mu\text{m}$  et  $100\text{nm}$  d'épaisseur. On distingue le mode principal suivi des harmoniques à bas champs (modes magnétostatiques).

produite par un courant traversant une ligne conductrice placée à proximité. L'alternative apportée ici s'avère comparativement plus prometteuse car le même circuit est utilisé à la fois pour la lecture et l'écriture réduisant de façon significative la complexité du dispositif tout en évitant les problèmes de "cross-talk" inhérent à un adressage matriciel.

Toutefois, cette nouvelle approche n'est pas sans défauts. Les premières expériences montrent que l'effet n'est efficace que pour des densités de courant très fortes, de l'ordre de  $10^7\text{ A/cm}^2$ , une valeur incompatible avec des applications industrielles. Il est donc primordial à l'heure actuelle de comprendre et maîtriser les processus dynamiques à l'origine de ces phénomènes physiques.

L'observation d'un tel effet nécessite de réduire le plus possible le diamètre du pilier. D'abord parce qu'il n'est pas facile d'injecter des courants ayant une telle densité sur de grandes surfaces, ensuite l'emploi de diamètres trop grands augmente l'influence du champ d'Oersted qui nuit à l'effet recherché (le transfert de spin est basé sur l'interaction d'échange). Dans une première phase, nous avons entrepris des mesures de détection mécanique sur des disques isolés de Py de différents diamètres afin de déterminer la dimension optimale pour notre instrument. La FIG.5.2 montre le spectre de résonance d'un disque de  $10\mu\text{m}$  de diamètre et  $100\text{nm}$  d'épaisseur aimanté parallèlement à son axe. On distingue nettement le mode principal suivi à bas champ des excitations harmoniques le long du diamètre. Une analyse du rapport signal sur bruit de cette mesure, nous a permis de déterminer la taille latérale optimale dans le cas d'une multicouche Py (10nm)/Cu (10nm)/Py (100nm). Actuellement nous essayons de fabriquer des piliers faisant  $1\mu\text{m}$  de diamètre par des techniques de lithographie électronique. Nous devrions avoir la sensibilité pour détecter le signal de RFM de la couche de Py supérieure (*i.e.* celle faisant 10nm d'épaisseur) et ceci en régime de courant nul.

Cela nécessitera aussi de choisir une taille de sonde qui soit comparable au diamètre du pilier. Or on sait que cette diminution aura aussi pour effet de perturber le spectre de résonance. Comme illustration nous montrons sur la FIG.5.3 la variation du signal de résonance en fonction de  $\ell$  la séparation pointe échantillon lorsque le diamètre de la sonde

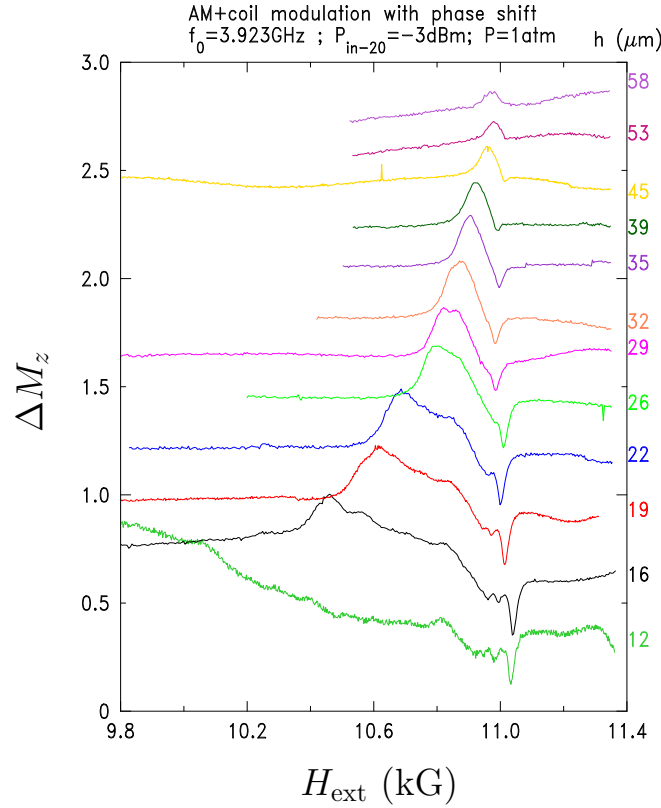


FIG. 5.3: **Influence de la sonde :** Spectre de résonance ferromagnétique d'un disque de Py de  $84 \mu\text{m}$  de diamètre (environ 4 fois plus grand que la sonde) pour différentes séparations pointe-échantillon.

est très petit devant celui de l'échantillon. Cet effet provient d'une modification du champ interne du disque par le champ de fuite de la pointe. L'influence ici est suffisamment importante pour rendre non-uniforme la distribution d'aimantation à 1 Tesla dans le disque. Lorsque la sonde s'approche de la surface elle augmente la séparation en énergie (donc en champ) des modes magnétosatiques, d'où un étalement du spectre. Elle délocalise aussi le maximum de vibration vers la périphérie. Ceci explique le couplage dipolaire négatif des premiers pics. Cet effet devrait diminuer lorsqu'on augmentera de façon significative le champ de polarisation.

## 5.3 Conclusion

Ce travail sur la détection mécanique de la résonance magnétique nous a d'abord permis de mettre en évidence l'amélioration importante de sensibilité par rapport aux techniques inductives classiques, ouvrant ainsi la voie à l'imagerie magnétique résonante sur une échelle microscopique. Nous avons aussi démontré que d'un point de vue à la fois analytique mais aussi expérimental, cette méthode de détection, mesurant  $M_z$  avec un levier oscillant dans la bande audio, permet de remonter à la dynamique de relaxation transverse et longitudinale, à l'échelle de la nanoseconde, aussi bien sur un système de spins paramagnétiques que ferromagnétiques. Cependant l'étude d'objets de plus en plus

petits requiert d'accroître le couplage entre la sonde et l'échantillon. La difficulté principale de cette technique sera de mieux comprendre et donc de maîtriser l'influence de la sonde sur le spectre de résonance.



# Bibliographie

- [1] A. Abragam, *Principles of Nuclear Magnetism*, Oxford University Press, 1961.
- [2] G. Albuquerque, J. Miltat, and A. Thiaville, *J. Appl. Phys.*, 89 (2001), p. 6719.
- [3] H. Alloul, H. Mahajan, H. Casalta, and O. Klein,  *$^{89}\text{Y}$  NMR study of the anisotropy of the static and dynamic susceptibility in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$* , *Phys. Rev. Lett.*, 70 (1993), pp. 1171–4.
- [4] G. Alzetta, E. Arimondo, and C. Ascoli, *Il Nuovo Cimento*, 54B (1968), p. 107.
- [5] G. Alzetta, E. Arimondo, C. Ascoli, and A. Gozzini, *Il Nuovo Cimento*, 52 B (1967), p. 392.
- [6] C. Ascoli, P. Baschieri, C. Frediani, L. Lenci, M. Martinelli, G. Alzetta, R. M. Celli, and L. Pardi, *Appl. Phys. Lett.*, 69 (1996), p. 3920.
- [7] L. Berger, *Phys. Rev. B*, 54 (1996), p. 9353.
- [8] R. D. Black, T. A. Early, P. B. Roemer, O. M. Mueller, A. Mogro-Campero, L. G. Turner, and G. A. Johnson, *A high-temperature superconducting receiver for nmr microscopy*, *Science*, 259 (1993), p. 793.
- [9] N. Bloembergen and S. Wang, *Relaxation effects in para- and ferromagnetic resonance*, *Phys. Rev.*, 93 (1954), p. 72.
- [10] K. J. Bruland, J. Krzystek, J. L. Garbini, and J. A. Sidles, *Anharmonic modulation for noise reduction in magnetic resonance force microscopy*, *Rev. Sci. Instrum.*, 66 (1995), p. 2853.
- [11] V. Charbois, V. V. Naletov, J. B. Youssef, and O. Klein, *Mechanical detection of ferromagnetic resonance spectrum in a normally magnetized Yttrium-Iron-Garnet disk*, *J. Appl. Phys.*, 91 (2002), p. 7337.
- [12] G. Y. Chen, R. J. Warmack, T. Thundat, D. P. Allison, and A. Huang, *Resonance response of scanning force microscopy cantilevers*, *Rev. Sci. Instrum.*, 65 (1994), p. 2532.
- [13] R. W. Damon and J. R. Eshbach, *Magnetostatic modes of a ferromagnet slab*, *J. Phys. Chem. Solids*, 19 (1961), p. 308.
- [14] R. W. Damon and H. van de Vaart, *Dispersion of long-wavelength spin waves from pulse-echo experiments*, *Phys. Rev. Lett.*, 12 (1964), p. 583.
- [15] —, *Propagation of magnetostatic spin waves at microwave frequencies in a normally-magnetized disk*, *J. Appl. Phys.*, 36 (1965), p. 3453.
- [16] R. Danneau, P. Warin, J. P. Attané, I. Petej, C. Beigné, C. Fermon, O. Klein, A. Marty, F. Ott, Y. Samson, and M. Viret, *Resistance of individual domain wall in submicron samples*, *Phys. Rev. Lett.*, 88 (2002), pp. 157201–4.
- [17] J. R. Eshbach, *Spin-wave propagation and the magnetoelastic interaction in Yttrium Iron Garnet*, *J. Appl. Phys.*, 34 (1963), p. 1298.
- [18] D. F. Evans, *Phil. Mag.*, 1 (1956), p. 370.



- [19] R. C. Flechter, R. C. L. Craw, and E. G. Spencer, *Electron spin relaxation in ferromagnetic insulators*, Phys. Rev., 117 (1960), p. 955.
- [20] V. Gehanno, Y. Samson, A. Marty, B. Gilles, et al., J. Magn. Magn. Mater., 172 (1997), p. 26.
- [21] J. Grollier, V. Cros, A. Hamzic, J. M. George, H. Jaffrès, A. Fert, G. Faini, J. Ben Youssef, and H. Le Gall, Appl. Phys. Lett., 78 (2001), p. 3663.
- [22] A. G. Gurevich and G. A. Melkov, *Magnetization Oscillation and Waves*, CRC Press, 1996.
- [23] P. C. Hammel, Z. Zhang, G. J. Moore, and M. L. Roukes, *Sub-surface imaging with the magnetic resonance force microscope*, J. Low Temp. Phys., 101 (1995), p. 59.
- [24] L. Hebel and C. Slichter, Phys. Rev., 113 (1959), p. 1504.
- [25] B. Heinrich, Y. Tserkovnyak, G. Woltersdorf, A. Brataas, R. Urban, and G. E. W. Bauer, *Dynamic exchange coupling in magnetic bilayers*, Physical Review Letters, 90 (2003).
- [26] M. J. Hurben and C. E. Patton, *Theory of two magnon scattering microwave relaxation and ferromagnetic resonance in magnetic thin films*, J. Appl. Phys., 83 (1998), p. 4344.
- [27] J. L. Hutter and J. Bechhoefer, *Calibration of atomic-force microscopy tips*, Rev. Sci. Instrum., 64 (1993), p. 1868.
- [28] J. D. Jackson, *Classical electrodynamics*, Wiley, New York, 1998.
- [29] D. Jaffe, J. C. Cacheris, and N. Karayianis, *Ferrite microwave detector*, Proc. IRE, 46 (1958), p. 594.
- [30] R. I. Joseph and E. Schlömann, *Demagnetizing field in nonellipsoidal bodies*, J. Appl. Phys., 36 (1965), p. 1579.
- [31] T. Kasuya and R. C. LeCraw, *Relaxation mechanisms in ferromagnetic resonance*, Phys. Rev. Lett., 6 (1961), p. 223.
- [32] J. G. Kempf and J. A. Marohn, Phys. Rev. Lett., 90 (2003), p. 087601.
- [33] C. Kittel, *Interaction of spin waves and ultrasonic waves in ferromagnetic crystals*, Phys. Rev., 110 (1958), p. 836.
- [34] O. Klein, C. d. C. Chamon, D. Tang, D. M. Abusch-Magder, U. Meirav, X.-G. Wen, M. A. Kastner, and S. J. Wind, *Exchange effects in an artificial atom at high magnetic fields*, Phys. Rev. Lett., 74 (1995), pp. 785–9.
- [35] O. Klein, V. Charbois, V. V. Naletov, and C. Fermon, *Direct measurement of the spin-lattice relaxation in a ferromagnet*, To be published in J. Magn. Magn. Mater.
- [36] ———, *Measurement of the ferromagnetic relaxation in a micron-size sample*, Phys. Rev. B, 67 (2003), p. 220407(R).
- [37] O. Klein, S. Donovan, M. Dressel, and G. Grüner, *Microwave cavity perturbation technique: Principles*, Int. J. of Infrared and Millimeter Waves, 14 (1993), pp. 2423–57.
- [38] O. Klein, K. Holczer, G. Grüner, J. J. Chang, and F. Wudl, *The electrodynamics of the superconducting state of  $\kappa(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}(\text{NCS})_2$* , Phys. Rev. Lett., 66 (1991), pp. 655–8.
- [39] O. Klein, K. Holczer, G. Grüner, and G. A. Emelchenko, *Conductivity coherence peak in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$* , J. de Phys. I (Paris), 2 (1992), pp. 517–22.
- [40] O. Klein, V. V. Naletov, and H. Alloul, Eur. Phys. J. B, 17 (2000), p. 57.
- [41] O. Klein, E. J. Nicol, K. Holczer, and G. Grüner, *Conductivity coherence factors in the conventional superconductors Nb and Pb*, Phys. Rev. B, 50 (1994), pp. 6307–16.

- [42] O. Klein, Y. Samson, A. Marty, S. Guillous, M. Viret, C. Fermon, and H. Al-loul, *Magnetization process in FePd thin films*, J. Appl. Phys., 89 (2001), pp. 6781–3.
- [43] C. Kooy and U. Enz, *Experimental and theoretial study of the domain configuration in thin layers of BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>*, Philips Res. Repts, 15 (1960), p. 7.
- [44] E. M. Landau, L. D. .and Lifshitz, Sov. Phys., 8 (1935), p. 153.
- [45] Landolt and Börnstein, *Group III, Volume 4 : Magnetic and other properties of oxides and related compounds, part b*, Numerical data and functional relationship in Science and technology, Springer, Berlin, 1970.
- [46] P. C. Lauterbur, Nature, 242 (1973), p. 190.
- [47] R. Le-Craw and E. G. Spencer, J. Phys. Soc. Japan, Suppl. (B1), 17 (1962), p. 401.
- [48] W.-C. Lin and G. K. Fedder, *A comparison of induction-detection nmr and force-detection nmr on micro-nmr device design*, Tech. Rep. CMU-RI-TR-01-06, Robotics Institute, Carnegie Mellon University, Pittsburgh, PA, March 2001.
- [49] D. Mahasoro, *Épitaxie et étude physique (magnétisme statique et dynamique) de films minces de grenat ferrimagnétique de très faible relaxation*, thèse de doctorat, Université Paris Sud, Orsay, France, 1986.
- [50] M. J. Malliavin, O. Acher, C. Boscher, F. Bertin, and V. Larin, *High frequency permeability of thin amorphous wires with various anisotropy fields*, J. Magn. Magn. Mater., 196 (1999), p. 420.
- [51] H. J. Mamin, R. Budakian, B. W. Chui, and D. Rugar, *Detection and manipulation of statistical polarization in small spin ensembles*, Phys. Rev. Lett., 91 (2003), p. 207604.
- [52] P. Mansfield and P. K. Granell, J. Phys., C 6 (1973), p. L422.
- [53] J. A. Marohn, R. Fainchtein, and D. D. Smith, *An optimal magnetic tip configuration for magnetic-resonance force microscopy*, Appl. Phys. Lett., 73 (1998), p. 3778.
- [54] D. Mozyrsky, I. Martin, and P. C. Pelekhov, D. and Hammel, *Theory of spin relaxation in magnetic resonance force microscopy*, Appl. Phys. Lett., 82 (2003), p. 1278.
- [55] E. B. Myers, D. C. Ralph, J. A. Katine, R. N. Louie, and R. A. Buhrman, Science, 285 (1999), p. 867.
- [56] V. V. Naletov, V. Charbois, O. Klein, and C. Fermon, *Quantitative measurement of the ferromagnetic resonance signal by force detection*, To be published in Appl. Phys. Lett.
- [57] V. V. Naletov, V. Charbois, O. Klein, and C. Fermon, Appl. Phys. Lett., 83 (2003), p. 3132.
- [58] J. M. Neumeister and W. A. Ducker, *Lateral, normal and longitudinal spring constants of atomic force microscopy cantilevers*, Rev. Sci. Instrum., 65 (1994), p. 2527.
- [59] D. L. Olson, T. L. Peck, A. G. Webb, R. L. Magin, and J. V. Sweedler, Science, 270 (1995), p. 1967.
- [60] D. E. O'Reilly and T. Tsang, J. Chem. Phys., 46 (1967), p. 1291.
- [61] J. A. Osborn, *Demagnetizing factors of the general ellipsoid*, Phys. Rev., 67 (1945), p. 351.
- [62] C. E. Patton, Z. Frait, and C. H. Wilts, *Frequency dependence of the parallel and perpendicular ferromagnetic resonance linewidth in permalloy films, 2-36 GHz*, J. Appl. Phys., 46 (1975), p. 5002.
- [63] T. L. Peck, R. L. Magin, J. Kruse, and M. Feng, IEEE Trans. Biomed. Eng., 41 (1994), p. 706.

- [64] P. Poncharal, Z. L. Wang, D. Ugarte, and W. A. de Heer, *Science*, 283 (1999), p. 1513.
- [65] C. P. Poole, *Electron Spin Resonance*, Wiley, 1967.
- [66] B. Reulet, A. Y. Kasumov, M. Kociak, R. Deblock, I. I. Khodos, Y. B. Gorbatov, V. T. Volkov, C. Journet, and H. Bouchiat, *Phys. Rev. Lett.*, 85 (2000), p. 2829.
- [67] D. Rugar, C. S. Yannoni, and J. A. Sidles, *Nature*, 360 (1992), p. 563.
- [68] D. Rugar, O. Züger, S. Hoen, C. S. Yannoni, H. M. Vieth, and R. D. Kendrick, *Science*, 264 (1994), p. 1560.
- [69] A. Schaff and W. S. Veeman, *J. Magn. Res.*, 126 (1997), p. 200.
- [70] —, *Mechanically detected nuclear magnetic resonance image of a multilayer system at normal pressure*, *Appl. Phys. Lett.*, 70 (1997), p. 2598.
- [71] E. Schlömann, *Generation of phonons in high-power ferromagnetic resonance experiments*, *J. Appl. Phys.*, 31 (1960), p. 1647.
- [72] J. Schrieffer, *Theory of Superconductivity*, Addison-Wesley, New York, 1988.
- [73] M. S. Seehra, *New method for measuring the static magnetic susceptibility by paramagnetic resonance*, *Rev. Sci. Instrum.*, 39 (1968), p. 1044.
- [74] J. A. Sidles, *Appl. Phys. Lett.*, 58 (1991), p. 2854.
- [75] J. A. Sidles and D. Rugar, *Phys. Rev. Lett.*, 70 (1993), p. 3506.
- [76] J. C. Slonczewski, *J. Magn. Magn. Mater.*, 159 (1996), p. 1.
- [77] M. Sparks, *Ferromagnetic relaxation theory*, McGraw-Hill, 1964.
- [78] B. C. Stipe, H. J. Mamin, T. D. Stowe, T. W. Kenny, and D. Rugar, *Phys. Rev. Lett.*, 86 (2001), p. 2874.
- [79] B. C. Stipe, H. J. Mamin, T. D. Stowe, T. W. Kenny, and D. Rugar, *Magnetic dissipation and fluctuations in individual nanomagnets measured by ultrasensitive cantilever magnetometry*, *Phys. Rev. Lett.*, 86 (2001), p. 2874.
- [80] B. J. Suh, P. C. Hammel, Z. Zhang, and M. M. M. et al., *Ferromagnetic resonance imaging of co films using magnetic resonance force microscopy*, *J. Vac. Sci. and Technol. B*, 16 (1998), p. 2275.
- [81] M. Tsoi, A. G. M. Jansen, J. Bass, W. C. Chiang, V. Tsoi, and P. Wyder, *Nature*, 406 (2000), p. 46.
- [82] R. Verhagen, C. W. Hilbers, A. P. M. Kentgens, L. Lenci, R. Groeneveld, A. Wittli, and H. van Kempen, *Mechanical detection of nmr. advantages of a digital approach*, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 1 (1999), p. 4025.
- [83] S. D. Vonsovskii, *Ferromagnetic Resonance*, Pergamon Press, 1966.
- [84] K. Wago, D. Botkin, C. S. Yannoni, and D. Rugar, *Force-detected electron-spin resonance : adiabatic inversion, nutation, and spin echo*, *Phys. Rev. B*, 57 (1998), p. 1108.
- [85] —, *Paramagnetic and ferromagnetic resonance imaging with a tip-on-cantilever magnetic resonance force microscope*, *Appl. Phys. Lett.*, 72 (1998), p. 2757.
- [86] K. Wago, O. Züger, R. Kendrick, C. S. Yannoni, and D. Rugar, *J. Vac. Sci. and Technol. B*, 14 (1996), p. 1197.
- [87] K. Wago, O. Züger, J. Weneger, R. Kendrick, C. S. Yannoni, and D. Rugar, *Rev. Sci. Instrum.*, 68 (1997), p. 1823.
- [88] X. Waintal, E. B. Myers, P. W. Brouwer, and D. C. Ralph, *Phys. Rev. B*, 62 (2000), p. 12317.

- [89] L. R. Walker, *Magnetostatic modes in ferromagnetic resonance*, Phys. Rev., 105 (1957), p. 390.
- [90] R. L. White and I. H. Solt, *Multiple ferromagnetic resonance in ferrite spheres*, Phys. Rev., 104 (1956), p. 56.
- [91] K. Y. Yasumura, T. D. Stowe, E. M. Chow, T. Pfafman, T. W. Kenny, B. C. Stipe, and D. Rugar, *Quality factors in micron- and submicron-thick cantilevers*, IEEE JMEMS, 9 (2000), p. 117.
- [92] Z. Zhang, P. C. Hammel, and P. E. Wigen, *Observation of ferromagnetic resonance in a microscopic sample using magnetic resonance force microscopy*, Appl. Phys. Lett., 68 (1996), p. 2005.
- [93] O. Züger, S. T. Hoen, C. S. Yannoni, and D. Rugar, *Three-dimensional imaging with a nuclear magnetic resonance force microscope*, J. Appl. Phys., 79 (1996), p. 1881.
- [94] O. Züger and D. Rugar, *First images from a magnetic resonance force microscope*, Appl. Phys. Lett., 63 (1993), p. 2496.



## **Annexe A**

### **Publications**

Eur. Phys. J. B 17, 57–68 (2000)

THE EUROPEAN  
PHYSICAL JOURNAL BEDP Sciences  
© Società Italiana di Fisica  
Springer-Verlag 2000

## Mechanical detection of nuclear spin relaxation in a micron-size crystal

O. Klein<sup>1,a</sup>, V.V. Naletov<sup>2</sup>, and H. Alloul<sup>1,b</sup><sup>1</sup> Laboratoire des Solides Irradiés, École Polytechnique, 91128 Palaiseau, France<sup>2</sup> Physics Department, Kazan State University, Kazan, 420008, Russia

Received 23 February 2000

**Abstract.** A room temperature nuclear magnetic resonance force microscope (MRFM), fitted in a 1 tesla electromagnet, has been used to measure the nuclear spin relaxation of  $^1\text{H}$  in a micron-size (70 ng) crystal of ammonium sulfate. NMR sequences, combining both pulsed and continuous wave radio-frequency fields, have allowed us to measure mechanically  $T_2$  and  $T_1$ , the transverse and longitudinal spin relaxation times. Because two spin species with different  $T_1$  values are measured in our 7  $\mu\text{m}$  thick crystal, magnetic resonance imaging of their spatial distribution inside the sample section have been performed. To understand quantitatively the measured signal, we carefully study the influence of spin-lattice relaxation and non-adiabaticity of the continuous-wave sequence on the intensity and time dependence of the detected signal.

**PACS.** 07.79.Pk Magnetic force microscopes – 76.60.-k Nuclear magnetic resonance and relaxation – 87.61.Ff Instrumentation

### 1 Introduction

For a long time research groups have looked for new ways of detecting electronic or nuclear paramagnetic resonance with better sensitivity. A review of different proposed methods can be found in the introduction of Abragam's book [1]. In two seminal papers [2,3], Sidles recognized the advantage of coupling the spin system to a mechanical oscillator for magnetic resonance imaging. In this technique, the force signal is proportional to the magnetic field gradient [4], which, in an extremely inhomogeneous field, should allow high spatial resolution. The new technique is referred to as magnetic resonance force microscopy (MRFM) [5].

The first magnetic resonance force signal was detected by Rugar *et al.* in 1992 while exciting electron spin resonance (eMRFM) in a 30 ng crystal of diphenylpicrylhydrazil [6]. Two years later, Rugar *et al.* reported the mechanical detection of  $^1\text{H}$  (protons) nuclear magnetic resonance (nMRFM) in 12 ng of ammonium nitrate [7]. These two pioneering experiments demonstrate that a micro-fabricated cantilever, identical to the ones developed for atomic force microscopy, can detect the magnetic moment of a micron-size sample. In the case of nuclear magnetic resonance (NMR) [7], the achieved sensitivity of  $10^{13}$  spin,

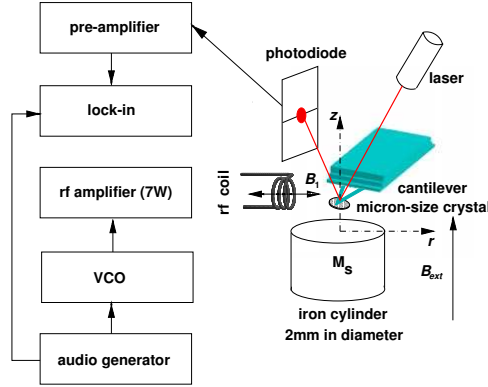
at room temperature and in a field of 2.4 T, represents a substantial improvement over the standard coil detection.

Significant progress has been made in the past few years. In 1996, Zhang *et al.* mechanically detected the ferromagnetic resonance (fMRFM) of yttrium iron garnet [8]. Imaging experiments with eMRFM [9,10], nMRFM [11,12] and fMRFM [13] were performed. A magnetic resonance torque signal in a homogeneous magnetic field [14] was also detected. Improvement of the force sensitivity by operating at low temperatures [15–17] was demonstrated. Force maps of the sample were obtained with the magnetic probe placed on the mechanical resonator in eMRFM [18] and fMRFM [13]. The highest sensitivity reported so far is around 200 electron spin in a 1 Hz bandwidth. The result was obtained by operating an eMRFM at 77 K in a very large magnetic field gradient [19]. In 1996, Wago *et al.* demonstrated that a pulse sequence combined with fast adiabatic passages can allow measurement of the nuclear spin-lattice relaxation time of  $^{19}\text{F}$  in calcium fluoride at low temperatures [15]. The same method was used to measure the longitudinal spin relaxation of  $^1\text{H}$  in ammonium sulfate at room temperature and normal pressure [20,21]. Recent eMRFM work in vitreous silica at 5 K showed that the same principles can be also applied to study electron spin dynamics of  $E'$  centers with long  $T_1$  [17].

In this paper, we report the first measurements of both the transverse and longitudinal nuclear spin dynamics of  $^1\text{H}$  using mechanical detection. A very thin sample

<sup>a</sup> Present address: Service de Physique de l'État Condensé, CEA Orme des Merisiers, 91191 Gif-Sur-Yvette, France  
e-mail: oklein@cea.fr

<sup>b</sup> Present address: Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud, 91405 Orsay Cedex, France



**Fig. 1.** MRFMs are miniature versions of the Faraday balance. The instrument fits between the poles of an electromagnet that generates a homogeneous static field  $B_{\text{ext}} = 1$  T. A sample is affixed onto a micro-fabricated cantilever and placed in a field gradient  $g \approx 500$  T/m produced by a 2 millimeter-size iron bar. The gradient serves to create a magnetic force on the spin system. The induced Å-scale bending of the cantilever is measured by a laser beam deflection on a photodiode. To increase the sensitivity, the nuclear magnetization is inverted periodically at 1.4 kHz, a frequency that corresponds to the fundamental flexure mode of the cantilever. The induced vibration is monitored by a lock-in. The nuclear spin oscillations are obtained by cyclic adiabatic inversions using a frequency modulated r.f. field produced by a VCO. The carrier is at the Larmor frequency of protons.

is used to analyze if new phenomena might be specific to small sizes. Our instrument is a simple home-built MRFM located inside a 1 tesla electromagnet. The mechanical motion of the cantilever is monitored by a laser beam deflection system. The sample is a  $7 \mu\text{m}$  thick crystal of  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ . Two spin-lattice relaxation times are observed,  $T_{1s} = 0.4$  s and  $T_{1l} = 5$  s. The latter value corresponds to the  $T_1$  reported in the literature for this compound [22,23]. The short relaxation, however, might be due to water contamination inside the crystal during its contact with air. These same two relaxation times are also measured by conventional NMR in powder samples with particles of dimensions smaller than  $50 \mu\text{m}$ .

After introducing in Section 2 the measurement technique employed in this study, we will present in Section 3 our results on the transverse and longitudinal spin relaxation properties of  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ . This will be followed in Section 4 by a more detailed analysis of the time dependence and magnitude of the force signal in order to quantify the proportion of spins with short and long  $T_1$  and to determine the effect of the non-adiabaticity of the sequence in the measured signal. Finally a model to describe our experimental data will be proposed.

## 2 Measurement of the force signal

The setup is schematically represented in Figure 1. The experiment is performed at room temperature inside a vacuum cell ( $10^{-2}$  torr) constantly connected to the inlet of a rotary pump. The instrument [24] fits between the poles of an iron core electromagnet which produces a static magnetic field  $B_{\text{ext}}\mathbf{k}$  along the  $z$  axis. To the uniform field one adds a second inhomogeneous field with axial symmetry produced by a magnetized iron bar 8 mm in length and 1.9 mm in diameter. The polarization field experienced by the spin is  $B_0 = B_{\text{ext}} + B_{\text{cyl}}$ , with  $B_0 = \mathbf{B}_0 \cdot \mathbf{k}$  and  $B_{\text{cyl}} = \mathbf{B}_{\text{cyl}} \cdot \mathbf{k}$ . Near the symmetry axis, the instantaneous magnetic force acting on the sample is given by the expression [25]:

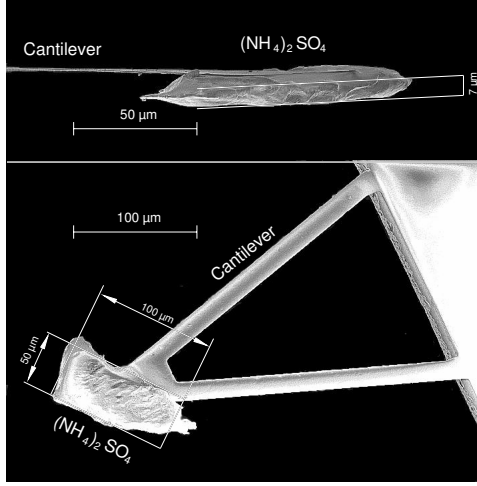
$$F(t) = \int_{V_s} M_z(\mathbf{r}, t) \frac{\partial B_{\text{cyl}}}{\partial z} dV. \quad (1)$$

Here  $M_z$  is the  $z$  component of the bulk magnetization and  $V_s$  is the volume of the sample. For small sample size, we make the approximation that the field gradient  $g = \partial B_{\text{cyl}} / \partial z$  is uniform over  $V_s$ . A new length variable  $\zeta = B_0(\mathbf{r})/g$  is defined so that a plane of constant  $\zeta$  maps onto a surface (actually a paraboloid) of constant polarization field which also corresponds to a sheet where the spins have the same motion. A paraboloid of fixed  $\zeta$  value, however, shifts axially away from the iron cylinder when  $B_{\text{ext}}$  increases. In this experiment, the sample is placed 0.70 mm above the iron cylinder and centered on the cylinder axis. At this distance, the calculated axial field gradient is  $g = -470$  T/m (see Appendix A).

The mechanical force detection is obtained by measuring the elastic deformation along the  $z$  axis of a micro-fabricated cantilever on which the sample is attached. In this orientation, the probe is sensitive to the longitudinal component of the nuclear magnetization in contrast with a standard coil detection. The cantilever equation of motion is represented by a damped harmonic oscillator with a single degree of freedom. The measurement technique uses the optical deflection of a  $4 \mu\text{W}$  HeNe laser beam which reflects off the rear side of the cantilever onto a position-sensitive detector.

Our test compound is  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ . This non-magnetic insulator has a high proton density  $d = 6.4 \times 10^{22} \text{ }^1\text{H}/\text{cm}^3$  and is in its paraelectric state above 223 K. NMR measurements of the  $^1\text{H}$  spin-lattice relaxation time at 300 K in our powder [26] give  $T_{1z} \approx 5$  s along the static field [27]. The  $^1\text{H}$  linewidth is 5 G and the second moment is  $M_2 = 4 \text{ G}^2$  at 295 K [28]. Our sample is a crystal cleaved to a platelet aspect ratio and glued with epoxy on the end of a commercial  $\text{Si}_3\text{N}_4$  amorphous cantilever of spring constant  $k = 0.008 \text{ N/m}$ , as can be seen in Figure 2. After completing the assembly, the cantilever resonance frequency drops from 5.8 kHz to 1.4 kHz due to the sample mass [29]. The quality factor of the loaded cantilever is  $Q \approx 4000$  in vacuum. From the electron microscopy images (Fig. 2), the sample dimensions are approximately  $100 \times 50 \times 7 \mu\text{m}^3$  with the smallest length (the thickness) oriented along the axial field. This represents a volume





**Fig. 2.** Images of a commercial  $\text{Si}_3\text{N}_4$  (amorphous) cantilever: a  $7\text{ }\mu\text{m}$  thick single-crystal  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  sample is glued on the cantilever end with epoxy. The loaded cantilever has a resonance frequency of  $1.4\text{ kHz}$ , a spring constant of  $0.008\text{ N/m}$  and a quality factor of  $4000$  in vacuum. The estimated sample volume is  $3.5 \times 10^{-8}\text{ cm}^3$ .

$V_s = 3.5 \times 10^{-8}\text{ cm}^3$  or a mass  $m = 70\text{ ng}$  and corresponds to  $N \approx 10^{15}$  protons. The temperature of the cantilever holder is stabilized around  $+27\text{ }^\circ\text{C}$  during the measurement [30]. The nuclear magnetization at thermal equilibrium is expressed by the Curie law  $\mathbf{M}_0 = (d\mu_n^2 B_0 / k_B T) \mathbf{k}$ , with  $\mu_n = 1.4 \times 10^{-26}\text{ J/T}$  the proton magnetic moment,  $T = 300\text{ K}$  and  $B_0 = 1.3\text{ T}$  the polarization field. This gives a magnetic moment  $M_0 V_s = 2.3 \times 10^{-16}\text{ J/T}$ .

In order to increase the sensitivity,  $M_z$  is modulated at a frequency  $\omega_m$  close to  $\omega_c$ , the frequency of the fundamental flexure mode of the cantilever. At the moment, the optimal configuration uses cantilevers that have mechanical resonance frequencies in the audio range and Larmor frequencies  $\omega_0$  which are several orders of magnitude larger (radio or microwave frequencies). Only two methods have been used to create an oscillatory force on the cantilever: cyclic saturation and cyclic adiabatic inversion. They are restricted respectively to compounds that have spin-lattice relaxation times  $T_1$  either shorter or larger than the oscillation period of the cantilever.

In our case, the modulation of  $\mathbf{M}$  is generated by a continuous-wave (c.w.) sequence that consists of periodic adiabatic fast passages [1]. The radio-frequency (r.f.) source is a 35-75 MHz Voltage Controlled Oscillator (VCO). The r.f. output field is amplified up to  $7\text{ W}$  and fed into an impedance matched resonating circuit ( $Q_{\text{rf}} \simeq 100$ ) tuned to a fixed frequency,  $54.7\text{ MHz}$ . A small coil (3 turns,  $0.8\text{ mm}$  in diameter) is in series with the tank circuit. The sample is  $0.5\text{ mm}$  away from this antenna. The nuclear spins are irradiated for a few seconds by a linearly polarized r.f. field  $B_x = 2B_1 \cos \int_0^t \omega(t') dt'$

with  $\omega(t) = \Omega \sin(\omega_m t) + \omega_0$ , a sine-wave modulation of the r.f. frequency around the proton Larmor frequency  $\omega_0 = \gamma g \zeta_0$ , where  $\gamma/2\pi = 4.258\text{ kHz/G}$  is the nuclear gyromagnetic ratio. The surface of constant  $\zeta = \zeta_0$  is called the resonant sheet. The sinusoidal frequency modulation is started at a time  $t = 0$ . In a transformation to a rotating coordinate system with an instantaneous angular velocity  $\omega(t)\mathbf{k}$ , the effective magnetic field is:

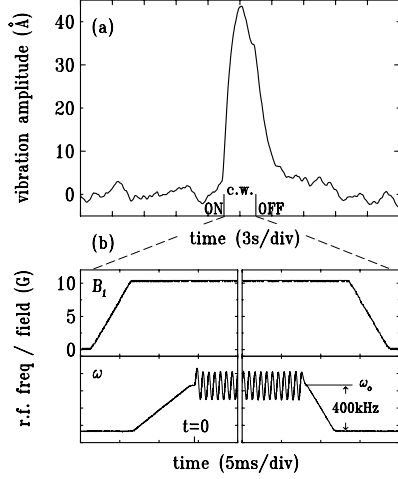
$$\mathbf{B}_e(\zeta, t) = B_1 \mathbf{i} + \left\{ g \zeta - \frac{\omega(t)}{\gamma} \right\} \mathbf{k}. \quad (2)$$

$\theta$  is defined as the polar angle made by the apparent field with the external field. The magnetization, however, precesses about the direction  $\mathbf{B}_e + \theta/\gamma \mathbf{j}$ , with  $\dot{\theta} = \partial\theta/\partial t$  (see Appendix B). A parameter for non-adiabaticity is defined with  $\tan \alpha = \dot{\theta}/(\gamma|\mathbf{B}_e|)$  the angle between the two vectors. Provided that the adiabatic condition  $\alpha \ll 1$  is satisfied, the spin system remains at all times in a state of internal equilibrium and  $\mathbf{M}$  is parallel to  $\mathbf{B}_e$  as required by Curie's law. The longitudinal magnetization is  $M_z(\zeta, t) = |\mathbf{M}| \cos \theta$ , where

$$\cos \theta = \frac{g \zeta - \omega(t)/\gamma}{\sqrt{\{g \zeta - \omega(t)/\gamma\}^2 + B_1^2}}. \quad (3)$$

For free spins,  $|\mathbf{M}|$  is a constant of the motion [1]. This is no longer true in condensed matter because of spin-lattice relaxation. In our sample, however, the magnetization decay is slow compared to the modulation period. Under our measurement protocol, an extra defocusing originates from the lack of adiabaticity of the modulation. In a first step, these effects are neglected and they will be considered in a more detailed analysis, deferred to a later section (see also Appendix B). At time  $t = 0$ ,  $B_1$  is assumed to be turned on adiabatically with the sample initially in thermal equilibrium. In this case the norm  $M$  reflects the state of the longitudinal magnetization immediately before the force measurement. During the c.w. sequence, the oscillatory movement of  $M_z(t)$  comes principally from the  $\cos \theta$  factor. The value is expanded in time series  $\cos \theta \approx a_0 + a_1 \sin(\omega_m t)$  [31] with  $a_1$  the first harmonic Fourier component [11] (higher harmonics have a negligible effect on the motion of the cantilever). Because of the large field inhomogeneities, the amplitude of oscillation depends on the location inside the sample. The resonant sheet, which is the paraboloid of constant  $\zeta_0$ , corresponds to the surface of maximum amplitude of oscillation. The spatial dependence of  $a_1(\zeta)$  is the sensitivity profile.  $\Gamma$  is the half width at half maximum of this bell-shaped curve.  $\Gamma$  has the units of a distance and it defines the thickness of the slice probed. The amplitude of  $\Gamma$  depends on both  $\Omega$  and  $B_1$  [32]. The induced vibration is synchronously amplified by a lock-in technique through a single-pole low-pass linear filter of time constant  $\tau_l$ . For  $\omega_m = \omega_c$ , the lock-in signal grows exponentially (an exact expression will be given in Eq. (11)) to the asymptotic amplitude

$$A_0 = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{Q g}{k} \int_{V_s} M_0 a_1(\zeta) d\zeta. \quad (4)$$

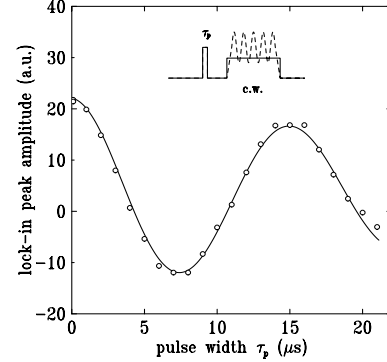


**Fig. 3.** (a) Vibration amplitude of the cantilever measured by the lock-in for a  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  crystal containing  $10^{15}$  protons at 300 K in  $B_{\text{ext}} = 0.9425$  T. The trace corresponds to a single shot experiment with no averaging. The lock-in time constant is  $\tau_l = 0.3$  s. (b) Details of the start and end of the c.w. sequence. The crystal is irradiated for 3 s by a r.f. field of  $B_1 = 10$  G (upper panel). The bottom panel shows the voltage waveform applied to the VCO. It produces a sinusoidal frequency modulation around  $\omega_0/2\pi = 54.7$  MHz. The amplitude of the modulation is  $\Omega/2\pi = 150$  kHz. The width of the curve is the digitalization noise of the oscilloscope (not the phase noise).

In conclusion, the lock-in output is proportional to the longitudinal magnetic moment inside the probed slice at the beginning of the c.w. sequence. In the ideal case of a uniform inversion of all spins inside the sample ( $a_1 = 1, \forall \zeta$ ), the asymptotic amplitude would be  $A_{\text{tot}} = QgM_0V_s/(k\sqrt{2})$ .

The upper panel of Figure 3 shows the time dependence of the lock-in output  $A(t)$ . The c.w. sequence is applied between the markers. The time delay between force measurements is set to 27 s ( $> 5T_1$ ) to ensure a steady state magnetization close to the thermal equilibrium value. The lock-in time constant is  $\tau_l = 0.3$  s which corresponds to an output noise of 4 Å. The bottom panel of Figure 3 displays the time dependence of  $B_1$  and  $\omega$  at the beginning and end of the c.w. sequence. At the start, the amplitude of  $B_1$  is turned on from 0 to 10 G in 5 ms when the frequency is well off-resonance, *i.e.* 400 kHz below  $\omega_0/2\pi$ . The frequency is then ramped to resonance in 7 ms. Finally, the frequency modulation of the r.f. field is applied for 3 s with a deviation  $\Omega/2\pi = 150$  kHz. For these settings, the calculated value of  $\Gamma = 7$   $\mu\text{m}$  is comparable to the sample thickness.

Since the r.f. tank circuit is tuned to a fixed frequency, the resonance is found by sweeping the external field  $B_{\text{ext}}$ . There is *no* spurious vibrations of the cantilever induced by the r.f. fields when  $B_{\text{ext}}$  is outside the resonance



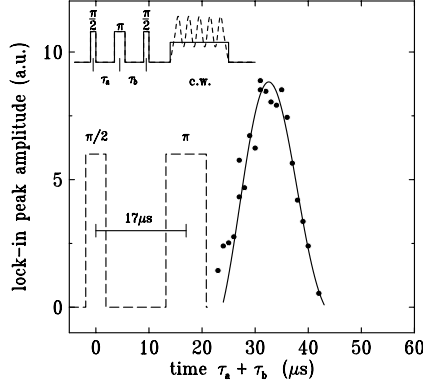
**Fig. 4.** The amplitude of the force signal (lock-in peak amplitude averaged over 1 s around its maximum) is shown as a function of the width of a r.f. pulse applied 13 ms before the c.w. sequence. Each point is the average of 16 c.w. sequences. The solid line is proportional to a damped  $\cos \varphi$  with  $\varphi = \gamma \tau_p B_1$  the nutation angle. The 6.4 W r.f. power during the pulse corresponds to a rotating field of  $B_1 = 15$  G at the sample location. The settings for the c.w. sequence are a r.f. field of 10 G,  $\Omega/2\pi = 50$  kHz and  $\tau_l = 100$  ms. The inset is a schematic of the time dependence of  $B_1$  (solid line) and  $\omega$  (dashed line).

range. Figure 3a shows the amplitude of the lock-in signal achieved in a one shot experiment at the resonance maximum,  $B_{\text{ext}} = 0.9425$  T. The maximum vibration amplitude is around 40 Å which corresponds to a signal to noise ratio of 20 dB. The shape of the lock-in signal  $A(t)$  depends on the value  $B_{\text{ext}}$  [17]. For  $B_{\text{ext}} = 0.9425$  T, *i.e.*  $\zeta_0$  set at the middle of the sample thickness, *no* steady-state vibrations of the cantilever are induced by the c.w. sequence and the lock-in signal decays toward zero for long a sequence. On the other hand, for  $B_{\text{ext}} \neq 0.9425$  T, an unbalanced partial repolarization of the magnetization occurs during each cycle and the lock-in signal decays to a finite value which changes sign for  $B_{\text{ext}}$  smaller or larger than 0.9425 T.

### 3 Relaxation measurements

In this section the nuclear spin dynamics of our sample are measured by applying a series of r.f. pulses before the c.w. sequence described above.

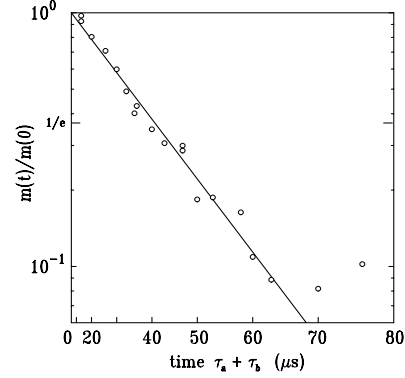
In order to calibrate the strength of the r.f. field, a r.f. pulse of duration  $\tau_p$  is applied, with an amplitude  $B_1$ , 13 ms before the c.w. sequence. During this pulse,  $\mathbf{M}_0$  rotates about  $\mathbf{B}_e$  through an angle  $\varphi$ . The angle obtained at the end of the pulse is  $\varphi = \gamma |\mathbf{B}_e| \tau_p$  [15, 17]. Within a few milli-seconds after the pulse, the nutated magnetization vector decays to its longitudinal component which then determines the amplitude of the maximum vibrations achieved by the cantilever during the force measurement.  $B_1$  is set at maximum power, *i.e.* 6.4 W, for the pulse. The c.w. sequence uses a 2.9 W r.f. field. Figure 4 shows



**Fig. 5.** Measurement of the transient shape of the spin-echo: a  $\pi/2$ - $\tau_a$ - $\pi$  pulse sequence is used to form a spin echo. The transverse magnetization is measured with the combination of a  $\pi/2$  pulse and the c.w. sequence. The amplitude of the force signal is shown as a function of  $\tau_a + \tau_b$  with a fixed  $\tau_a = 17 \mu s$ . A r.f. field of  $B_1 = 15$  G is used for the pulses. The settings for the c.w. sequence are a r.f. field of 10 G,  $\Omega/2\pi = 50$  kHz and  $\tau_1 = 100$  ms. The solid line is the calculated shape of the spin echo expected for a platelet of  $6.5 \mu m$  thickness in the inhomogeneous magnetic field.

the lock-in output averaged over a 1 s time interval around its peak amplitude. For spins that are at  $\zeta_0$ , the signal is proportional to  $\cos \varphi$ . The data are fitted by the functional form  $\exp(-\tau_p/\tau) \cos(\gamma B_1 \tau_p) + b$ . The period gives a calibration of the r.f. field strength at the sample location and we get  $B_1 = 15$  G during the pulse. The other fitting parameters are  $\tau = 43 \pm 6 \mu s$  and a positive offset  $b = 3 \pm 0.2$  Å. The values of these last two parameters depend strongly on  $B_1$ . The positive offset  $b$  is mainly due to the non-uniform field inside the sample [33]. For  $^1H$  away from  $\zeta_0$ , the direction of  $\mathbf{B}_e$  is not exactly perpendicular to  $\mathbf{k}$  and only a partial inversion of the  $z$  component is obtained when  $\varphi = \pi$ . The decay of the magnetic moment fitted by  $\tau$  is due to field inhomogeneity which causes a dephasing of the magnetization in the transverse plane [34].

To study the transverse magnetization decay of  $^1H$  [17] a sequence of 3 pulses is used. A  $\pi/2$  pulse is applied to the spin system, so that the magnetization at  $\zeta_0$  is rotated to the transverse plane. After a fixed delay,  $\tau_a$ , a  $\pi$  pulse is applied to form a spin echo. Shortly after, a  $\pi/2$  pulse takes an instant snap-shot of the transverse magnetization by rotating it along  $\mathbf{k}$  and the frozen component is measured with the c.w. sequence. Varying the time delay,  $\tau_b$ , between the last two pulses reconstructs the transient shape of the spin echo. Using the same settings as the earlier measurement, the widths of the  $\pi/2$  and  $\pi$  pulse are set to  $3.8 \mu s$  and  $7.6 \mu s$  respectively. The delay between the center of the first two pulses is  $\tau_a = 17 \mu s$ . In Figure 5, the lock-in peak (again averaged over 1 s around its maximum) is shown as a function of  $\tau_a + \tau_b$ . As expected

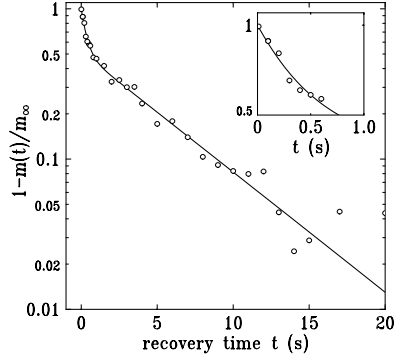


**Fig. 6.** Spin-spin relaxation time measurement: normalized heights of the spin echo are displayed on a square-logarithmic scale as a function of  $\tau_a + \tau_b$  with  $\tau_a = \tau_b$ . The straight line is a fit with  $\exp\{-(2\tau_a/T_2)^2\}$  where  $T_2 = 39 \pm 1 \mu s$ .

for a spin echo, the reconstructed transverse magnetization becomes refocused at a time  $2\tau_a$ . The shape of the spin echo reflects mainly the inhomogeneous broadening of the resonance line as due to the strong field gradient. The amplitude, however, should only be affected by the homogeneous contributions to the  $^1H$  line (dipolar coupling).

With increasing spacing  $\tau_a$  between pulses, the size of the spin echo signal decreases due to spin-spin relaxation. Using the same sequence as above, Figure 6 is a plot of the spin echo amplitude measured as a function of the time  $2\tau_a$ . The measured values are plotted on a  $x^2$ -log( $y$ ) scale and one finds that the data follow the relationship  $\exp\{-(t/T_2)^2\}$  with  $T_2 = 39 \pm 1 \mu s$ . Taking the inferred  $T_2$ , the dipolar linewidth [28] and the inhomogeneous broadening as due to the field gradient, the shape of the echo in Figure 5 is simulated. The solid line in Figure 5 is the best fit obtained for a sample thickness of  $6.5 \mu m$  which is in good agreement with the value obtained on the image.

The longitudinal magnetization recovery is now measured after a saturation comb [35]. This protocol puts efficiently inhomogeneous spin systems in a well defined uniform state outside thermal equilibrium. The saturation comb is composed of three  $\pi/2$  pulses spaced by  $100 \mu s$ . The c.w. sequence is applied at a variable delay ( $13 \text{ ms} < t < 20 \text{ s}$ ) after the comb. In order to obtain an intrinsic measurement of the relaxation, it is important to ensure that the sensitivity profile  $a_1(\zeta)$  is exclusively included inside the sample section, otherwise a partial repolarization of the magnetization occurs during the measurement cycle [17]. For our settings,  $\zeta_0$  is set exactly at the middle of the sample and  $\Gamma = 2.4 \mu m$  is smaller than the sample thickness. As before, the value plotted is the lock-in output averaged over a 1 s time interval around its maximum. No signals are detected when  $t = 13$  ms.

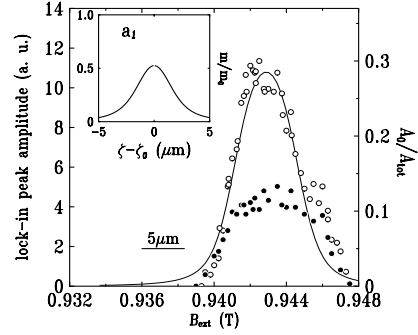


**Fig. 7.** Measurement of the longitudinal magnetization recovery: the logarithmic of the normalized amplitude of the force signal is shown as a function of the interval  $t$  between a saturation comb and the c.w. sequence. The solid line is a fit with a double exponential recovery which yields  $T_{1s} = 0.35 \pm 0.03$  s and  $T_{1l} = 5.4 \pm 0.5$  s. Each point is the average of 32 c.w. sequences. A r.f. field of  $B_1 = 15$  G is used for the comb. The settings for the cyclic adiabatic inversions are a r.f. field of 7 G,  $\Omega/2\pi = 50$  kHz and  $\tau_1 = 100$  ms. We make sure that there is no net repolarization of  $M$  during the c.w. sequence.

In Figure 7, two relaxation times in the recovery process are clearly observed. The results are fitted with a double exponential  $\rho_s \{1 - \exp(-t/T_{1s})\} + (1 - \rho_s) \{1 - \exp(-t/T_{1l})\}$  which gives  $\rho_s = 49 \pm 2\%$ ,  $T_{1s} = 0.35 \pm 0.03$  s and  $T_{1l} = 5.4 \pm 0.5$  s. The value  $\rho_s$  does not correspond directly to the proportion of spins that have a short relaxation ( $n_s$ ) since the factor between  $M_z$  and the lock-in amplitude is also a function of  $T_1$ .

Neutron diffraction studies [36] of the  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  crystal structure show that there are two  $\text{NH}_4^+$  sites at room temperature surrounded respectively by five and six  $\text{SO}_4^{2-}$  ions. The protons of the two inequivalent ammonium ions are coupled *via* dipole-dipole interactions and the measured spin-lattice relaxation rate at 300 K is an averaged value of the  $T_1^{-1}$ . In a variable temperature NMR measurements, O'Reilly and Tsang [23] observe a single exponential  $^1\text{H}$  relaxation process and analyze their  $T_1$  results by the reorientation correlation times  $\tau_0$  of the two distinctive  $\text{NH}_4^+$ . At 300 K,  $1/\tau_0$  should be larger than the Larmor frequency and the rotation should be isotropic which means that  $T_1$  should be independent of the orientation between the static field and the crystallographic axis. We suppose that our observed two  $T_1$  processes might be due to water contamination inside the sample during its contact with air. The presence of  $\text{H}_2\text{O}$  in the crystal lattice could decrease the reorientation correlation time of the ammonium ions, hence diminishing the protons  $T_1$ . The relatively high proportion of spins with short  $T_1$  might be due to the exceptionally small thickness of our crystal ( $7 \mu\text{m}$ ).

In order to check the latter hypothesis, a conventional NMR measurement was performed by A. Dooglav with a 1 T custom spectrometer. The sample consisted of  $\sim 1$  g of



**Fig. 8.** Force signal as a function of  $B_{\text{ext}}$ : a saturation comb is applied 0.6 s (closed circles) and 16 s (open circles) before the c.w. sequence. The solid line is the expected profile for a parallelepiped sample of  $7 \mu\text{m}$  thickness within both the free spin and adiabatic approximations. The c.w. sequence uses a r.f. field of 7 G,  $\Omega/2\pi = 25$  kHz and  $\tau_1 = 300$  ms. The inset shows the transfer function that corresponds to these settings,  $a_1$  is the spatial dependence of the sensitivity profile.

our sample ground to small particles with dimensions below  $50 \mu\text{m}$ . In this fine powder sample, a double relaxation process is also observed with the following parameters  $n_s = 17 \pm 5\%$ ,  $T_{1s} = 0.37 \pm 0.1$  s and  $T_{1l} = 4.7 \pm 0.2$  s. This result is in sharp contrast with experiments performed on coarser grains, where only one relaxation is observed with  $T_1 = 5.0 \pm 0.2$  s. The values of the two relaxation times are equal, within error bars, to the ones measured by MRFM. In addition, measurements were performed on the same  $50 \mu\text{m}$  powder after two weeks of aging in air. It showed a rise of  $n_s$  to  $26 \pm 3\%$  in the longitudinal magnetization recovery experiment. A standard spin-spin relaxation measurement on this powder seems also to indicate a double time  $T_2$  with  $n_s = 20 \pm 6\%$ ,  $T_{2s} = 49 \pm 12 \mu\text{s}$  and  $T_{2l} = 79 \pm 1 \mu\text{s}$ .

One corollary issue concerns the spatial distribution of each spin species inside the sample section. To perform this measurement, we record the amplitude of the lock-in signal as a function of  $B_{\text{ext}}$ . By sweeping  $B_{\text{ext}}$ , the surface  $\zeta_0$  is displaced to different heights in the sample. The force signal is then proportional to the density of spin around this location. In order to obtain a local measurement, the thickness  $l$  of the slice probed is reduced by decreasing both  $\Omega$  and  $B_1$ . The inset of Figure 8 shows the spatial dependence of the transfer function  $a_1(\zeta)$  for our settings and  $l$ , the half width at half maximum, is  $1.9 \mu\text{m}$ . Figure 8 shows the amplitude of the lock-in signal obtained for two different delays  $t$  between the saturating comb and the c.w. sequence. By changing  $t$ , the weight  $\rho_s$  of one spin species compared to the other is varied. Qualitatively, this protocol gives more weight to the spin species with short relaxation when the comb is close to the c.w. sequence. A first look at the result indicates that a more rounded distribution is obtained for the  $t = 0.6$  s data.

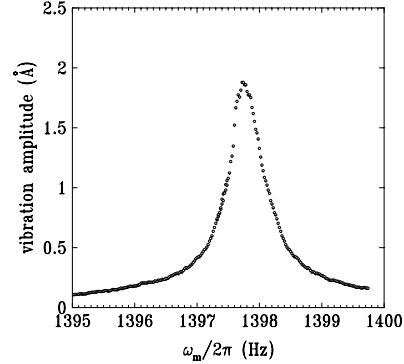
The measurements, however, collected close to the edge of the sample are skewed by repolarization processes that modify the shape of the lock-in signal. Inside the bulk of the crystal ( $0.942 \text{ T} \lesssim B_{\text{ext}} \lesssim 0.944 \text{ T}$ ), there is no clear evidence of a spatial modulation of one spin population compared to the other, *e.g.* a dip of the signal at  $0.9425 \text{ T}$ , the middle of the crystal. This result suggests that, within our resolution, the water contamination is uniform in the thickness. The solid line is a calculation of the expected profile for a parallelepiped sample of dimensions  $100 \times 50 \times 7 \mu\text{m}^3$  within both the free spin and adiabatic approximations. In spite of the idealized model, the  $t = 16 \text{ s}$  data (open circles) are well described by the calculated profile, except for the high-field range. The shoulder at  $B_{\text{ext}} = 0.946 \text{ T}$  corresponds to the surface of the sample that has been glued with epoxy to the cantilever. We did not attempt to fit this part of the data. The observed step in the signal might be due to the protons in the epoxy. A small roll angle between the sample and the cantilever combined with the particular shape of our crystal is also consistent with the observed effect.

Although the data analyzed here-above ensure that two populations of spin with different NMR properties are present, their actual proportion is not quantitatively determined, as the actual values of the relaxation times influence the magnitude of the measured signal. For a better knowledge of the sensitivity of the technique to the measurement parameters, it is then necessary to perform quantitative analyses.

#### 4 Quantitative measurements

In this section, we shall first calibrate the mechanical response of the cantilever and the mechanical noise. The time dependence  $A(t)$  of the lock-in signal is calculated, taking into account relaxation processes and non-adiabatic effects. The experimental responses for different values of  $B_1$  and  $\Omega$  are compared with the calculations. This allows us to select an experimental condition for which non-adiabatic effects can be neglected. It is then shown that two relaxation times are indeed required to fit the time dependence of the observed lock-in signals, with values consistent with those obtained from  $T_1$  data.

The  $Q$  of the cantilever is first measured carefully using the noise vibration spectrum of the cantilever loaded with the sample in vacuum when the r.f. power is off. The lock-in time constant is set to  $\tau_l = 10 \text{ s}$ . An audio generator sweeps the lock-in reference around  $\omega_c$ . The plotted value in Figure 9 is the standard deviation of the lock-in signal estimated over  $100 \times \tau_l$  (the mean lock-in signal is zero). During the whole experiment, the temperature stability of the cantilever is better than  $\pm 0.01^\circ\text{C}$  which guarantees that  $\omega_c$  does not shift by more than  $0.01 \text{ Hz}$ . Fitting the squared amplitude with a Lorentzian [37], one obtains the cantilever resonance frequency  $\omega_c/2\pi = 1397.77 \text{ Hz}$  and quality factor  $Q = 4000$  (defined as the ratio of  $\omega_c$  over the full width at half maximum of the *power* spectrum). Away from resonance, our sensitivity is limited



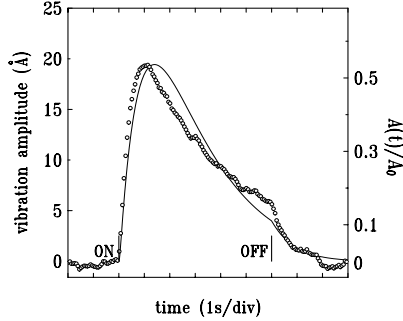
**Fig. 9.** Noise vibration spectrum of the cantilever with the sample attached: the data is obtained in vacuum ( $10^{-2}$  torr) when *no* r.f. fields are applied. The lock-in time constant is  $\tau_l = 10 \text{ s}$ . The signal is the standard deviation of the lock-in output estimated over  $100 \times \tau_l$ . The cantilever holder temperature stability is better than  $\pm 0.01^\circ\text{C}$  during the measurement.

by the noise of the detection electronics. It is several orders of magnitude smaller than the Å-scale motion of the cantilever at resonance and therefore it can be neglected. Near  $\omega_c$ , the cantilever motion consists of white noise amplified by a narrow-bandwidth mechanical resonator [38].  $\Delta\nu_c$  is the one-sided equivalent noise bandwidth (ENBW) of the mechanical resonator  $\Delta\nu_c = \omega_c/8Q = 0.27 \text{ Hz}$ . The noise at the output of the lock-in is this narrow-band motion noise observed through a  $RC$  filter of time constant  $\tau_l = 1/RC$  whose ENBW  $\Delta\nu_l = 1/4\tau_l = 0.025 \text{ Hz}$ . Exactly at resonance, the combined distribution gives an ENBW  $\Delta\nu = (1/\Delta\nu_c + 1/\Delta\nu_l)^{-1} = 0.023 \text{ Hz}$ . To convert our data to spectral density, the resonance amplitude in Figure 9 must be divided by  $\sqrt{\Delta\nu}$ . The measured noise spectral density is  $\mathcal{A} = 13 \text{ Å}/\sqrt{\text{Hz}}$ . This figure also corresponds to the noise observed in Figure 3 where  $\Delta\nu = 0.20 \text{ Hz}$ . The result has to be compared with the intrinsic correlation function for fluctuations of a Brownian particle harmonically bound to an oscillator with a single degree of freedom of spring constant  $k$ :

$$\langle AA(t) \rangle = \frac{4Qk_B T}{k\omega_c} . \quad (5)$$

Taking the square root of the above expression, one gets  $\mathcal{A}_T = 10 \text{ Å}/\sqrt{\text{Hz}}$  at  $T = 300 \text{ K}$  which is in good agreement with our measured value. In conclusion, our dominant noise comes from the thermal vibration of the cantilever. From this result, one can estimate the smallest force detectable by the instrument in one shot  $k\mathcal{A}/Q = 2 \times 10^{-15} \text{ N}/\sqrt{\text{Hz}}$ .

In order to obtain a quantitative measurement of our force signal when the r.f. field is applied, a more detailed study of the time dependence of the lock-in signal  $A(t)$  is needed. The length of the c.w. sequence is increased



**Fig. 10.** Time dependence of the lock-in signal: the trace is the average of 32 c.w. sequences with  $\tau_l = 30$  ms. The c.w. sequence is composed of a r.f. field of 10 G with  $\Omega/2\pi = 50$  kHz. The solid line is the calculated vibration amplitude of a harmonic oscillator driven by a damped sinusoidal magnetic force with a decay time constant  $\tau_m = 2.2 \pm 0.07$  s. In this case, the predicted maximum signal is  $A_{\text{peak}} = 0.5A_0$  with  $A_0 = QF_0/k$ .

to 6 s compared to Figure 3. Figure 10 is the average of the lock-in signal over 32 sequences using a short lock-in time constant of  $\tau_l = 30$  ms. The striking feature of this plot is that the norm of the magnetization  $|\mathbf{M}|$  decays during the c.w. sequence. We have checked that experimental perturbations such as the phase noise of the r.f. source are negligible in this case [39].

In the rotating frame, the magnetization tends to recover slowly towards a steady state value due to spin-lattice relaxation processes [40]. These relaxations are different from the ones measured in section 3 which are inferred from the time evolution of the magnetization in the *absence* of r.f. fields. In addition, the lack of adiabaticity quantified by  $\alpha \approx \dot{\theta}/\gamma B_e$  produces a precession movement around the locally changing effective field direction. This mistracking corresponds to a magnetization component perpendicular to the instantaneous precession axis  $\mathbf{B}_e + \dot{\theta}/\gamma \mathbf{j}$  that relaxes due to spin-spin interactions. But in the limit  $\alpha \ll 1$  and  $2\pi/\omega_m \ll T_1$ , the decrease of  $M$  after one cycle  $\Delta = M(t + 2\pi/\omega_m) - M(t)$  is small. The value is calculated at the lowest order for one spin species (see Appendix B).

$$\begin{aligned} \Delta \approx & -M \left\{ \int_0^{2\pi/\omega_m} \dot{\theta}(t) \int_0^t \dot{\theta}(t') \exp\left(-\int_{t'}^t \frac{1}{T_1^+} dt''\right) \right. \\ & \times \cos\left(\int_{t'}^t \frac{\gamma B_1}{\sin\theta(t'')} dt''\right) dt' dt \\ & + \int_0^{2\pi/\omega_m} \left( \frac{\cos^2\theta(t)}{T_{1z}} + \frac{\sin^2\theta(t)}{T_{1x}} \right) dt \Big\} \\ & + M_0 \int_0^{2\pi/\omega_m} \frac{\cos\theta(t)}{T_{1z}} dt, \end{aligned} \quad (6)$$

where  $T_{1z}$  is the usual  $T_1$  in the absence of an r.f. field,  $T_{1x}$  is the transversal spin-lattice relaxation and  $1/T_1^+ = (1/T_{1y} + \cos^2\theta/T_{1x} + \sin^2\theta/T_{1z})/2$ . It was shown that the relaxation mechanisms in this compound are associated with the time varying field induced by the change in the  $\text{NH}_4^+$  orientation. For an exponential correlation function with correlation time  $\tau_0$ ,  $T_{1x}$  is expressed as a sum of the spectral density of these fluctuating fields  $J^{(i)}(\omega) = \tau_0/(1+\omega^2\tau_0)$  with an index  $i$  that corresponds to the number of net spin flip:  $1/T_{1x} = \frac{3}{2}\gamma^4\hbar^2 I(I+1)/r^6 (\frac{5}{2}J^{(1)}(\omega_0) + \frac{1}{4}J^{(2)}(2\omega_0) + \frac{1}{4}J^{(0)}(2\omega_0))$ , with  $\omega_e = \gamma B_e$ . In the approximation for our compound that  $\omega_e\tau_0 \ll 1$ , one obtains that  $T_{1x}$  is independent of  $\theta$  and  $T_{1y} = T_{1x}$ . Coming back to equation (6), one recognizes that the first integral is the decrease due to the finite value of the non-adiabaticity parameter  $\alpha$  (see Appendix B). The second represents the spin-lattice relaxation  $T_{1\rho}$  in the rotating frame [41]. The last integral is the equilibrium magnetization that corresponds to the spin temperature in the rotating frame.  $\tau$  and  $M_{\text{eq}}$  are defined by rewriting the above expression in the form  $\Delta/2\pi = -M/(\omega_m\tau) + M_{\text{eq}}/(\omega_m\tau)$ . During the c.w. sequence, the oscillatory driving magnetic force is damped and the instantaneous value is given by:

$$F(t) \approx g \sin(\omega_m t) \int_{V_s} a_1(\zeta) M(\zeta, t) d\zeta + \text{const.}, \quad (7)$$

with

$$M(\zeta, t) = \left\{ M_{\text{eq}}(\zeta) + \{M_0 - M_{\text{eq}}(\zeta)\} \exp\left(\frac{-t}{\tau(\zeta)}\right) \right\}. \quad (8)$$

The integral in equation (7) relaxes approximately according to a single exponential towards its equilibrium value  $m_{\text{eq}} = \int_{V_s} a_1(\zeta) M_{\text{eq}}(\zeta) d\zeta$  with an apparent characteristic time  $\tau_m$ . One notes that  $m_{\text{eq}} = 0$  by symmetry when  $\zeta_0$  is centered at the middle of the sample  $\zeta_0 = \zeta_m$ . The value of  $m_{\text{eq}}$  is positive for  $\zeta_0 < \zeta_m$  and changes sign for  $\zeta_0 > \zeta_m$  [17]. In the particular case where  $m_{\text{eq}} = 0$  and  $\alpha \ll 1$ , then it can be shown that the coefficient  $\tau_m$  is bounded between  $T_{1x} \leq \tau_m \leq T_{1z}$  [21].

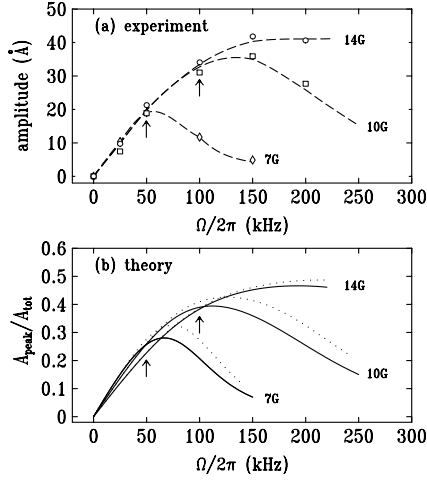
The forced vibrations of an harmonic oscillator are given by the convolution product:

$$a(t) = \beta \int_0^t \frac{F(t')}{k} \exp\left\{-\frac{t-t'}{\tau_c}\right\} \sin\{\omega_c(t-t')\} \omega_c dt', \quad (9)$$

with  $\beta = \{1 + 1/(4Q^2)\}$  and  $1/\tau_c = \frac{1}{2}\omega_c/Q$  the damping constant of the cantilever. In our experiment the external force is  $F(t) = F_0 \exp(-t/\tau_m) \exp(i\omega_m t)$  for  $m_{\text{eq}} = 0$ , with  $F_0 = kA_0/Q$  and  $\tau_m$  the characteristic decay time of the magnetic force.  $a(s)$  the Laplace transform of equation (9) is calculated in the complex plane:

$$\frac{k}{F_0} a(s) = \frac{\tau_m(4Q^2 + 1)}{(s\tau_m + 1 - i\tau_m\omega_m) \{(s\tau_c + 1)^2 + 4Q^2\}}. \quad (10)$$

The response  $A(t)$  of the lock-in is the imaginary part of the inverse Laplace transform  $\mathcal{L}^{-1}\{a(s + i\omega_m)/(1 + \tau_l s)\}$



**Fig. 11.** (a) Measurements of the amplitude of the lock-in signal is shown as a function of the modulation amplitude for different strengths of the r.f. field. The dashed lines are guides for the eye. The arrows indicate the limits of the adiabatic regime. The measurements are performed at  $B_{\text{ext}} = 0.9425$  T. (b) Calculated amplitude of the lock-in signal obtained for a  $7 \mu\text{m}$  thick sample using equation (7). The parameters introduced in the model are  $T_{1z} = 4.9$  s,  $T_{1x} = T_{1y} = 3.2$  s and  $T_2 = 40 \mu\text{s}$  (solid line) or  $100 \mu\text{s}$  (dotted line).

with  $\tau_l$  the lock-in time constant. An approximation can be obtained in the special case where  $\omega_m = \omega_c$  in the limit  $Q \gg 1$  and  $\omega_c \gg (1/\tau_m, 1/\tau_l)$ .

$$\frac{A(t)}{A_0} \approx \frac{1}{(1/\tau_m - 1/\tau_c)(\tau_c - \tau_l)} \exp\left(-\frac{t}{\tau_c}\right) + \frac{\tau_m/\tau_c}{(1/\tau_c - 1/\tau_l)(\tau_l - \tau_m)} \exp\left(-\frac{t}{\tau_l}\right) + \frac{\tau_m/\tau_c}{(1/\tau_c - 1/\tau_m)(\tau_m - \tau_l)} \exp\left(-\frac{t}{\tau_m}\right). \quad (11)$$

The sum of these three exponentials vanishes at  $t = 0$  and each term decays to zero with a different time constant at a later time  $t > 0$ . This leads to a peaked lock-in signal whose amplitude  $A_{\text{peak}}$  and position depends on  $\tau_m$  (for a fixed  $\tau_c$  and  $\tau_l$ ). At the end of the c.w. sequence in Figure 10 ( $t > 6$  s), the decaying free oscillations of the cantilever (time constant  $\tau_c$ ) are observed. If one tries to fit the data with the above nonlinear form,  $\tau_m = 2.2 \pm 0.07$  s is obtained but the quality of the fit is not very good. Values of  $\tau_m$  smaller than  $T_{1x} = 3.2$  s have also been reported by Verhagen *et al.* [21] and these findings were attributed to the phase noise of the r.f. source. However, when large modulation amplitudes are employed for the c.w. sequence, such a fast force decay can also be consistent with a magnetization decrease due to a lack of adiabaticity.

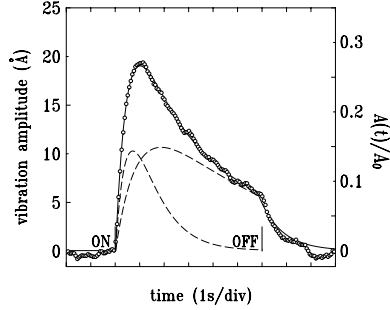
To understand further the meaning of this fit parameter  $\tau_m$ , we plot in Figure 11a the lock-in peak amplitude measured for different values of  $\Omega$  and  $B_1$  when  $B_{\text{ext}} = 0.9425$  T. The non-adiabaticity parameter  $\alpha$  increases along the abscissa axis. For a fixed  $\Omega$  and  $B_1$ , the value of  $\alpha$  oscillates with time and passes through a maximum,  $\alpha_{\text{max}} = \Omega\omega_m/(\gamma^2 B_1^2)$ , at a time  $t = 0$  modulo  $\pi/\omega_m$ . Figure 11b shows the amplitude of the peak signal  $A_{\text{peak}}$  predicted by equation (11) with  $F(t)$  calculated from equation (7) using a sample thickness of  $7 \mu\text{m}$ . The results are normalized by  $A_{\text{tot}} = QgM_0V_s/(k\sqrt{2})$  the amplitude associated with a uniform inversion of all spin inside the sample. The parameters introduced in the model are the values of the spin-lattice relaxation times measured on powder samples by conventional NMR with  $T_{1z} = 4.9$  s along the static field and  $T_{1x} = 3.2$  s along a 10 G r.f. field, in the approximation that  $T_{1y} = T_{1x}$ . In our theoretical model, perturbation effects from the dipolar broadening are also introduced. They are approximated as a time independent local field with a Lorentzian lineshape. The solid lines are the numerical predictions using  $T_2 = 40 \mu\text{s}$  and the dotted lines correspond to  $T_2 = 100 \mu\text{s}$ .

The increase of the force signal at small  $\Omega (\leq 50 \text{ kHz})$  corresponds to an increase of the modulated magnetic moment. Larger frequency deviation increases the width of the probed slice,  $\Gamma$ , and more protons oscillate at  $\omega_m$ . For both large  $B_1 \geq 14$  G and large  $\Omega \geq 150 \text{ kHz}$  the amplitude of the signal eventually saturates when  $\Gamma$  becomes greater than the sample thickness.

For  $B_1 = 7$  and  $10$  G, the deviation from the low  $\Omega$ -linear increase (indicated by the arrows) marks the cross-over from an adiabatic regime to a quasi-adiabatic one [40]. In our sample the threshold occurs at  $\alpha_{\text{max}} = 0.1$ , in good agreement with the theoretical model. In the adiabatic regime ( $\alpha_{\text{max}} < 0.1$ ) the dominant relaxation processes, which reflect in  $\tau_m$ , correspond to  $T_{1\rho}$  effects, while, in the quasi-adiabatic regime ( $\alpha_{\text{max}} > 0.1$ ), they result from dipolar interactions with a ratio determined by the non-adiabaticity parameter ( $T_2 < \tau_m < T_1$ , see Appendix B). The predicted position of this cross-over depends somewhat on the dipolar contribution  $T_2$ .

From the last discussion, one can conclude that the settings of Figure 10 correspond to a non-adiabatic parameter  $\alpha_{\text{max}} = 0.04$  well inside the adiabatic regime for our compound. It can then be inferred that the decrease of the force signal in Figure 10 is due to spin-lattice effects in the rotating frame and our fitted value of  $\tau_m$  must be an average of the two  $T_1$ 's reported in Figure 7.

The time dependence of the lock-in signal is fitted with a double damped synchronous excitation of *two* spin populations with respectively short ( $\tau_{\text{ms}}$ ) and long ( $\tau_{\text{ml}}$ ) relaxation times. The nonlinear function  $n_s A(t, \tau_{\text{ms}}) + (1 - n_s) A(t, \tau_{\text{ml}})$  is used where  $A(t)$  is given by equation (11). The best fit is obtained for  $\tau_{\text{ms}} = 0.55 \pm 0.02$  s,  $\tau_{\text{ml}} = 4.8 \pm 0.2$  s and  $n_s = 69 \pm 1\%$ . The result is the solid line shown in Figure 12. The fit values obtained for the relaxation times are similar to those measured in the magnetization recovery experiment in Figure 7. An immediate question is which portion of the lock-in output signal



**Fig. 12.** Signal of Figure 10: the solid line is the response of an harmonic oscillator driven by two synchronous forces with short and long relaxations times  $n_s A(t, \tau_{ms}) + (1 - n_s) A(t, \tau_{ml})$ . The best fit is obtained for  $\tau_{ms} = 0.55 \pm 0.02$  s,  $\tau_{ml} = 4.8 \pm 0.2$  s and  $n_s = 70\%$ . The height of the peak is  $0.3A_0$ . The dashed lines show the contribution of each spin species.

should be used when several spin species are present in the sample. In Figure 12 the separate contribution to the lock-in signal of each spin species (dashed lines) is shown. The maximum force signal of the two spin species occurs respectively 0.7 s and 1.9 s after the start of the c.w. sequence for the short and long  $\tau_m$ . We recall that our definition of the force signal is the average of the lock-in peak amplitude over a 1 s time interval around its maximum value. This approach gives approximately equal weights to both spin species in the measurement. One can also observe in Figure 12 that the height of the two peaks are approximately equal despite the fact that there is 2.3 times more spin with short relaxation. As a matter of fact it can be shown that the mechanical detection is 2.4 times more sensitive to the spins that have a 0.55 s relaxation time compared to the spins that have a 4.8 s one. From this result, the value of the fit parameter  $\rho_s \approx 0.5$  in Figure 7 can be converted into the proportion of spins that have a short relaxation  $n_s = 2.4\rho_s / \{(2.4 - 1)\rho_s + 1\} = 70\%$ ; a value that agrees well with the fit  $n_s$  in Figure 12.

Finally, the expected amplitude of the force signal for our sample is calculated. Using equation (4), one gets a value of  $A_0 = 100$  Å for the settings used in Figure 12 ( $B_1 = 10$  G and  $\Omega/2\pi = 50$  kHz). In Figure 12 the predicted amplitude of the lock-in peak is  $0.3A_0$ , or 30 Å, which is close to the experimentally measured value of 20 Å. In conclusion, our measured amplitude of the peak lock-in signal is in good agreement with the theoretical prediction if the two spin-lattice relaxation times of the two spin species are taken into account. Other effects such as misalignment of the sample compared to the cylinder magnetic axis can account partially for a decrease of the signal (*e.g.* an offset of 0.1 mm from the axis decreases the amplitude of the lock-in signal by a factor of 2).

## 5 Conclusion

Measurement sequences combining fast adiabatic passages and pulses have been reported. They allow us to measure

$T_1$  and  $T_2$  for microscopic samples using a mechanical detection. This has been applied to quantitative analyses of the detected signals for a 7  $\mu\text{m}$  thick sample of  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ . The transverse relaxation  $T_2$  has been found consistent with conventional NMR detection on a macroscopic sample. Our sample displays, however, two spin lattice relaxation times  $T_{1s} = 0.4$  s and  $T_{1l} = 5$  s. While the long  $T_{1l}$  corresponds to that measured for coarse powder samples, the short  $T_{1s}$  might be due to water contamination of our thin crystal during its contact with air. This contamination is found to be uniform in the thickness of the sample. This large difference in  $T_1$  values has allowed us to study the influence of the spin-lattice relaxation in the rotating frame on the time dependence of the lock-in signal, as well as the variation of signal intensity with increasing non-adiabaticity of the sweep sequence. A consistent analysis of all experimental parameters has been proposed and will be quite useful in future quantitative investigations of MRFM signals. Our work also raises the problem of how to perform reliable spin lattice relaxation measurements at the sample surface. Our  $T_1$  investigation is mainly restrained to the bulk of the sample, because the shape of the lock-in signal (which reflects in the apparent relaxation times) varies with  $B_{\text{ext}}$ . These difficulties prevented us from interpreting quantitatively our results on the spatial distribution of the different spin densities close to the edge. These issues will be best solved by performing a similar experiment on a hetero-layer sample of well-characterized composition.

We are greatly indebted to A. Dooglav for his help in the conventional NMR experiments. We also would like to thank C. Fermon, M. Goldman, J.F. Jacquinot and G. Lampel for stimulating discussions. This research was partly supported by the Ultimatch Program of the CNRS.

## Appendix A: Inhomogeneous field

Near the axis, a uniformly magnetized ( $M_s$ ) cylinder of length  $l$  and diameter  $\phi$  produces a field, whose component along  $\mathbf{k}$ ,  $B_{\text{cyl}}$ , decays radially as

$$\frac{B_{\text{cyl}}(r, z)}{4\pi M_s} = \left\{ b_{\frac{1}{2}} \left( \frac{z+l}{\phi} \right) - b_{\frac{1}{2}} \left( \frac{z}{\phi} \right) \right\} + 3 \left\{ b_{\frac{3}{2}} \left( \frac{z+l}{\phi} \right) - b_{\frac{3}{2}} \left( \frac{z}{\phi} \right) \right\} \frac{r^2}{\phi^2} + \mathcal{O}(r^4), \quad (\text{A.1})$$

with  $b_a(z) = z(1 + 4z^2)^{-a}$ . The fields are expressed in cylindrical coordinates with the origin centered on the cylinder's upper surface (see Fig. 1). In our case  $M_s$  is calculated from the applied field  $B_{\text{ext}}$  needed to produce a resonance signal at the sample position,  $z = 0.70$  mm.  $B_{\text{cyl}}(0, z = 0.70) = \omega_0/\gamma - B_{\text{ext}} = 0.352$  T is put in the above expression and one obtains  $M_s \approx 1400$  emu/cm<sup>3</sup> for our iron. Using this result, the gradient  $g = -470$  T/m at the sample location is calculated.



## Appendix B: Adiabaticity

The aim of this Appendix B is to calculate the decrease of the magnetization due to the spin-lattice relaxation and the lack of adiabaticity. The solution below is proposed by M. Goldman. In the limit of strong r.f. fields (larger than the local field), one can neglect the spin-lattice relaxation of the dipolar energy expectation value. In the rotating frame, the time evolution of the different spin components are [40]:

$$\frac{\partial \langle I_z \rangle}{\partial t} = -\gamma B_1 \langle I_y \rangle + \frac{\langle I_0 \rangle - \langle I_z \rangle}{T_{1z}} \quad (\text{B.1a})$$

$$\frac{\partial \langle I_x \rangle}{\partial t} = +\gamma B_1 \cot \theta \langle I_y \rangle - \frac{\langle I_x \rangle}{T_{1x}} - \frac{i}{\hbar} \langle [\mathcal{H}_{Dz}, I_x] \rangle \quad (\text{B.1b})$$

$$\frac{\partial \langle I_y \rangle}{\partial t} = +\gamma B_1 (\langle I_z \rangle - \cot \theta \langle I_x \rangle) - \frac{\langle I_y \rangle}{T_{1y}} - \frac{i}{\hbar} \langle [\mathcal{H}_{Dz}, I_y] \rangle, \quad (\text{B.1c})$$

with  $\langle \mathbf{I} \rangle = \text{Tr}(\mathbf{I}\sigma)$  the expectation value of the magnetization,  $\sigma$  the instantaneous density matrix in the rotating frame and  $\mathcal{H}_{Dz}$  the secular part of the dipolar Hamiltonian. The commutator incorporates the local field contribution defined through  $B_e^2 = \text{Tr}(\mathcal{H}_{Dz}^2)/\gamma^2 \text{Tr}(I_z^2)$ . In our notation  $\theta$  is the angle between the directions of the static and effective field,  $B_e = B_1/\sin \theta$ , with  $B_1 \cot \theta$  the projection along  $\mathbf{k}$ . Under r.f. irradiation, a new coordinate system  $\{X, Y, Z\}$  is defined through a transformation by the unitary operator  $\exp(-i\theta I_y)$ , a rotation around  $y$  by  $\theta$ . In the doubly rotating frame the differential equations then become:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle I_z \rangle}{\partial t} = & +c \frac{\langle I_0 \rangle}{T_{1z}} - \left\{ \frac{s^2}{T_{1x}} + \frac{c^2}{T_{1z}} \right\} \langle I_z \rangle \\ & + \left( \dot{\theta} - cs \left\{ \frac{1}{T_{1x}} - \frac{1}{T_{1z}} \right\} \right) \langle I_x \rangle \end{aligned} \quad (\text{B.2a})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle I_x \rangle}{\partial t} = & -s \frac{\langle I_0 \rangle}{T_{1z}} - \left( \dot{\theta} + cs \left\{ \frac{1}{T_{1x}} - \frac{1}{T_{1z}} \right\} \right) \langle I_z \rangle \\ & + \gamma \frac{B_1}{s} \langle I_y \rangle - \left\{ \frac{c^2}{T_{1x}} + \frac{s^2}{T_{1z}} \right\} \langle I_x \rangle \\ & - \frac{3c^2 - 1}{2} \frac{i}{\hbar} \langle [\mathcal{H}_{Dz}, I_x] \rangle \end{aligned} \quad (\text{B.2b})$$

$$\frac{\partial \langle I_y \rangle}{\partial t} = -\gamma \frac{B_1}{s} \langle I_x \rangle - \frac{\langle I_y \rangle}{T_{1y}} - \frac{3c^2 - 1}{2} \frac{i}{\hbar} \langle [\mathcal{H}_{Dz}, I_y] \rangle, \quad (\text{B.2c})$$

with  $s = \sin \theta$  and  $c = \cos \theta$ .  $\mathcal{H}_{Dz}$  is the doubly truncated part of the dipolar Hamiltonian that commutes with  $I_z$ . The term  $\dot{\theta}/\gamma B_e$  is the inertia field due to the transformation to a time-dependent reference axis. In the adiabatic regime, defined by  $\alpha = \dot{\theta}/(\gamma B_e) \ll 1$ , it can be shown that  $\langle I_x \rangle = \langle I_y \rangle = 0$  and the first two terms of equation (B.2a) are the expression of the spin-lattice relaxation in the rotating frame for strong r.f. fields [1,41]. This appendix seeks to evaluate the term proportional to  $\langle I_x \rangle$  in equation (B.2a) that represents the decrease of  $\langle I_z \rangle$  due to the lack of adiabaticity. The equations of motion are

expressed in terms of the raising and lowering operators  $\langle I^+ \rangle = \langle I_x \rangle + i\langle I_y \rangle$  and  $\langle I^- \rangle$  its complex conjugate. We suppose that  $\gamma B_e \ll 1/\tau_0$ , the reorientation correlation rate, for our compound which leads to  $T_{1x}$  independent of  $\theta$  and  $T_{1y} \approx T_{1x}$ . First the adiabatic regime,  $\alpha_{\max} < 0.1$ , is examined where spin-spin interactions can be neglected. The influence of these processes will be discussed later on. As a consequence, one has

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle I^+ \rangle}{\partial t} \approx & -i\gamma \frac{B_1}{s} \langle I^+ \rangle - \frac{\langle I^+ \rangle}{T_1^+} \\ & - \left( \dot{\theta} + cs \left\{ \frac{1}{T_{1x}} - \frac{1}{T_{1z}} \right\} \right) \langle I_z \rangle - s \frac{\langle I_0 \rangle}{T_{1z}}, \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

with  $1/T_1^+ = (1/T_{1y} + c^2/T_{1x} + s^2/T_{1z})/2$ . Furthermore, the period of the cyclic passage is much smaller than the spin-lattice relaxation times. Hence, both  $1/T_{1z}$  and  $1/T_{1x}$  are negligible compared to  $\dot{\theta}$ :

$$\frac{\partial \langle I^+ \rangle}{\partial t} \approx -i\gamma \frac{B_1}{\sin \theta} \langle I^+ \rangle - \frac{\langle I^+ \rangle}{T_1^+} - \dot{\theta} \langle I_z \rangle - \sin \theta \frac{\langle I_0 \rangle}{T_{1z}}, \quad (\text{B.4})$$

which, upon integration, gives the result:

$$\begin{aligned} \langle I^+ \rangle = & - \int_0^t \left\{ \dot{\theta}(t') \langle I_z \rangle + \sin \theta(t') \frac{\langle I_0 \rangle}{T_{1z}} \right\} \\ & \times \exp \left\{ - \int_{t'}^t \frac{1}{T_1^+} + i \frac{\gamma B_1}{\sin \theta(t'')} dt'' \right\} dt', \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

assuming that  $\langle I^+ \rangle = 0$  at a time  $t = 0$ . The expression for  $\langle I^- \rangle$  is the complex conjugate of the above expression. For values of  $t < T_1$ , it is a good approximation to neglect  $\langle I_0 \rangle/T_{1z}$  compared to  $\dot{\theta} \langle I_z \rangle$  in the first bracket. Since the decay of  $\langle I_z \rangle$  is slow, it is replaced by a constant. Finally, the time variation of the longitudinal magnetization is given by:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle I_z \rangle}{\partial t} \approx & -\langle I_z \rangle \dot{\theta}(t) \int_0^t \dot{\theta}(t') \exp \left( - \int_{t'}^t \frac{1}{T_1^+} dt'' \right) \\ & \times \cos \left( \int_{t'}^t \frac{\gamma B_1}{\sin \theta(t'')} dt'' \right) dt' \\ & - \langle I_z \rangle \left( \frac{\cos^2 \theta(t)}{T_{1z}} + \frac{\sin^2 \theta(t)}{T_{1x}} \right) \\ & + \langle I_0 \rangle \frac{\cos \theta(t)}{T_{1z}}, \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

which has been used in equation (6) in the text. Although the general form of our final expression contains a  $T_1^+$  term in the first integral, the decrease of the magnetization due to the lack of adiabaticity of the fast passages is unrelated to spin-lattice relaxation mechanisms. This is best seen in the free spin limit ( $T_1 \rightarrow \infty$ ), where our above equation (B.6) reduces to the integral form of the ordinary differential equation  $\partial \langle \mathbf{I} \rangle / \partial t = \gamma \langle \mathbf{I} \rangle \times \mathbf{B}_e$ , an equation of motion that preserves the norm of the magnetization. In this limit, the first integral (the only non-vanishing term)

expresses the decrease of the projection  $\langle I_Z \rangle$  due to a mis-tracking of the magnetization vector from the effective field direction. After several passages, the magnetization eventually reaches a steady state movement: a precession in a cone of summit angle of order  $\alpha$  (the non-adiabaticity parameter) around the direction  $\mathbf{B}_e + \dot{\theta}/\gamma \mathbf{j}$ . For free spins, it implies that non-adiabatic effects alone cannot account for a substantial decrease of  $\langle I_Z \rangle$  on a time scale of several passages. In condensed matter, however, the magnetization component perpendicular to the effective field direction quickly defocuses (thereby reducing the norm) principally because of spin-spin interactions.

The influence of these interactions are best seen in another rotating frame  $\{X', Y', Z'\}$  where the direction  $Z'$  is aligned along the instantaneous axis of precession of the magnetization. The new system of differential equations is obtained by applying the unitary transformation  $\exp(-i\alpha I_X)$  to the equation system (B.2). Here second order corrections are examined and a more detailed analysis should take care of the new inertia field  $\dot{\alpha}$ . In this triply rotating coordinate system, the relaxation mechanisms along the  $X'$  and  $Y'$  directions are dominated by local field effects, which have a characteristic time of order  $T_2$ . The impact of these decays becomes prominent in the quasi-adiabatic regime ( $\alpha_{\max} > 0.1$ ) when a significant percentage of the bulk magnetization is projected perpendicular to the precession axis. A complete analytical account of these effects is complicated because the local field in the triply rotating frame oscillates with time. We have simplified the problem by adding a relaxation term  $-\langle I_q \rangle/T_2$  to the equation of motion of the  $q = X', Y'$  component respectively. This is equivalent to approximating these interactions to a time independent local field with a Lorentzian lineshape. Taking  $T_2 = 40 \mu\text{s}$  and solving numerically the linear differential equations, we find that, when  $\alpha_{\max} > 0.1$ , the percentage of bulk magnetization, which vanishes after *one* passage because of spin-spin interactions, corresponds roughly to the change in  $\langle I_{Z'} \rangle$  produced by the lack of adiabaticity, of order  $1 - \cos(\alpha_{\max}/2)$ .

## References

1. A. Abragam, *Principles of Nuclear Magnetism* (Oxford University Press, 1961).
2. J.A. Sidles, Appl. Phys. Lett. **58**, 2854 (1991).
3. J.A. Sidles, Phys. Rev. Lett. **68**, 1124 (1992).
4. J.A. Sidles, D. Rugar, Phys. Rev. Lett. **70**, 3506 (1993).
5. J.A. Sidles, J.L. Garbini, K.J. Bruland, D. Rugar, O. Züger, S. Hoen, C.S. Yannoni, Rev. Mod. Phys. **67**, 249 (1995).
6. D. Rugar, C.S. Yannoni, J.A. Sidles, Nature **360**, 563 (1992).
7. D. Rugar, O. Züger, S. Hoen, C.S. Yannoni, H.M. Vieth, R.D. Kendrick, Science **264**, 1560 (1994).
8. Z. Zhang, P.C. Hammel, P.E. Wigen, Appl. Phys. Lett. **68**, 2005 (1996).
9. O. Züger, D. Rugar, Appl. Phys. Lett. **63**, 2496 (1993).
10. P.C. Hammel, Z. Zhang, G.J. Moore, M.L. Roukes, J. Low Temp. Phys. **101**, 59 (1995).
11. O. Züger, S.T. Hoen, C.S. Yannoni, D. Rugar, J. Appl. Phys. **79**, 1881 (1996).
12. A. Schaff, W.S. Veeman, Appl. Phys. Lett. **70**, 2598 (1997).
13. B.J. Suh, P.C. Hammel, Z. Zhang, M.M. Midzor *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B **16**, 2275 (1998).
14. C. Ascoli, P. Baschieri, C. Frediani, L. Lenci, M. Martinelli, G. Alzetta, R.M. Celli, L. Pardi, Appl. Phys. Lett. **69**, 3920 (1996).
15. K. Wago, O. Züger, R. Kendrick, C.S. Yannoni, D. Rugar, J. Vac. Sci. Technol. B **14**, 1197 (1996).
16. K. Wago, O. Züger, J. Weneger, R. Kendrick, C.S. Yannoni, D. Rugar, Rev. Sci. Instrum. **68**, 1823 (1997).
17. K. Wago, D. Botkin, C.S. Yannoni, D. Rugar, Phys. Rev. B **57**, 1108 (1998).
18. K. Wago, D. Botkin, C.S. Yannoni, D. Rugar, Appl. Phys. Lett. **72**, 2757 (1998).
19. K.J. Bruland, W.M. Dougherty, J.L. Garbini, J.A. Sidles, S.H. Chao, J. Appl. Phys. **73**, 3159 (1998).
20. A. Schaff, W.S. Veeman, J. Magn. Res. **126**, 200 (1997).
21. R. Verhagen, C.W. Hilbers, A.P.M. Kentgens, L. Lenci, R. Groeneveld, A. Wittli, H. van Kempen, Phys. Chem. Chem. Phys. **1**, 4025 (1999).
22. S.R. Miller, R. Blinc, M. Brenman, J.S. Waugh, Phys. Rev. **126**, 528 (1962).
23. D.E. O'Reilly, T. Tsang, J. Chem. Phys. **46**, 1291 (1967).
24. S. Guillous, O. Klein (to be published).
25. Near the symmetry axis,  $\nabla B_{\text{cyl}} \approx (\partial B_{\text{cyl}}/\partial z)\mathbf{k}$ .
26. 99.999% purity (Aldrich).
27. The value is measured in a 1 T field using a coil detection (A. Dooglav). In this experiment, the powder is made of coarse grains.
28. R.E. Richards, T. Scafer, Trans. Faraday Soc. **57**, 210 (1961).
29. The sample mass and shape are stable for the duration of the experiment.
30. Using the static flexion of the cantilever as a temperature sensor, we estimate to  $+1.5^\circ\text{C}$  the elevation of the sample temperature during the r.f.-irradiation.
31. We can do this approximation because all slices are phase coherent.
32. The width of the probed slice is proportional to  $\sqrt{1.2(\Omega/\gamma)^2 + B_1^2}/g$ .
33. The fast relaxation  $T_{1s}$  can also partially explain the positive offset  $b$ .
34. In the limit  $B_1 > g \times \text{thickness}$ ,  $\tau^{-1}$  equals to  $(1/T_1 + 1/T_2)/2$  [1].
35. E. Fukushima, S.B.W. Roeder, *Experimental pulse NMR* (Addison-Wesley, 1981).
36. E.O. Schlemper, W.C. Hamilton, J. Chem. Phys. **44**, 4498 (1966).
37. J.L. Hutter, J. Bechhoefer, Rev. Sci. Instrum. **64**, 1868 (1993).
38. Comments about MRFM noise can be found in <http://weber.u.washington.edu/~sidles/>.
39. The phase noise of our setup is estimated from fast adiabatic passage measurements on de-ionized  $\text{H}_2\text{O}$  in a 1 T field with a coil detection and comparing the apparent  $\tau_m$  obtained with the VCO and a Marconi 2023 synthesizer.
40. M. Goldman, *Spin temperature and Nuclear Magnetic Resonance in solids* (Oxford University Press, 1970).
41. C.P. Slichter, *Principles of Magnetic Resonance*, 3rd edn. (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1996).

## Mechanical detection of ferromagnetic resonance spectrum in a normally magnetized yttrium–iron–garnet disk

V. Charbois

*Service de Physique de l'Etat Condensé, CEA Orme des Merisiers, F-91191 Gif-Sur-Yvette, France*

V. V. Naletov

*Service de Physique de l'Etat Condensé, CEA Orme des Merisiers, F-91191 Gif-Sur-Yvette, France  
and Physics Department, Kazan State University, Kazan 420008, Russia*

J. Ben Youssef

*Laboratoire de Magnétisme de Bretagne, CNRS/UMR 6135, 6 Av. Le Gorgeu, F-29285 Brest, France*

O. Klein<sup>a)</sup>

*Service de Physique de l'Etat Condensé, CEA Orme des Merisiers, F-91191 Gif-Sur-Yvette, France*

The ferromagnetic resonance spectrum of a normally magnetized yttrium–iron–garnet disk, with thickness of  $4.75\ \mu\text{m}$  and radius of  $80\ \mu\text{m}$ , is measured at room temperature both by magnetic resonance force microscopy and by standard detection of the microwave susceptibility. The comparison indicates that magnetic resonance force microscopy represents one of the most potent means of obtaining the *complete* ferromagnetic resonance spectra of micron-size samples. In the weak coupling regime, the measured data can be quantitatively understood within the framework of the Damon and Eshbach model. © 2002 American Institute of Physics.

[DOI: 10.1063/1.1456040]

Recently, there has been a renewed effort, both theoretical<sup>1</sup> and experimental,<sup>2</sup> to describe the spin dynamics of patterned magnetic thin films in anticipation of new fast magnetic devices. The time scale of interest is the nanosecond because it corresponds to the precession frequency of the magnetization about the internal field direction. The classical method of exciting spin waves is ferromagnetic resonance (FMR). These experiments study the splitting of the ground state through the observation at microwave frequencies of continuous wave absorption spectrum.<sup>3</sup> But standard cavity methods usually require sample dimensions that are much larger than the typical lateral size of an actual microfabricated device.

For micron-size samples,<sup>4</sup> a new sensitive technique, called ferromagnetic resonance force microscopy (fMRFM),<sup>5</sup> has been developed and its principle is to mechanically detect the net change of dipole moment induced by FMR resonances. It uses a permanent micromagnet placed in the stray field of the sample, which couples to the longitudinal magnetization (component along the static field,  $M_z$ ) through the dipolar interaction.<sup>6</sup> The force and torque acting on the probe produces a measurable elastic bending of a cantilever onto which the magnet is affixed.

The sensitivity of the mechanical detection will be illustrated with a comparison of MRFM data and standard measurements of the microwave susceptibility. In this article, the experiments will be restricted to the weak coupling regime, where a large separation ( $h=100\ \mu\text{m}$ ) is set between the probe and the sample.

Yttrium–iron–garnet (YIG) is the marvel material of FMR because of its remarkably low loss in magnetic propagation.<sup>7</sup> An important simplification of the MRFM spectroscopic signal can be obtained by using disk samples, since a probe magnet placed on the disk axis will preserve the axial symmetry. Cylindrical geometries have been extensively studied in the 1960's on millimeter-size rods and disks.<sup>8–10</sup> The measured resonances are ascribed to magnetostatic waves propagating radially across the sample. Their separation is determined by the cylinder aspect ratio.<sup>8</sup> They are labeled by  $(n,m)$ , the number of nodes, respectively, in the diametrical and circumferential directions. Magnetoexchange modes have been found to be negligible for film thickness above  $5\ \mu\text{m}$ .<sup>3</sup>

Our sample is microfabricated (ion milled) from a single crystal film (thickness  $S=4.75\ \mu\text{m}$ ) oriented along the  $[111]$  direction (easy axis) into a disk of radius  $R\approx 80\ \mu\text{m}$  as shown in Fig. 1(b). The dimensions are large enough so that standard FM experiments can be carried out on the sample. Figure 1(c) shows the microwave susceptibility of the disk as a function of the dc magnetic field applied along the disk axis ( $Oz$ ). The transverse absorption spectrum ( $\propto M_T$ ) is measured at 10.46 GHz by a wide band spectrometer using a standard crystal diode detector. The incident power is 2 mW, which is about the maximum excitation possible while keeping nonlinear effects reasonable.<sup>11</sup> Four magnetostatic modes are resolved. They correspond to the longest wavelength spin-wave modes allowed.

The same disk has then been used to test our mechanical FM detection. The setup is schematically represented in Fig. 1(a). The MRFM fits between the poles of an iron core electromagnet which applies a static field  $H_{\text{ext}}$  along the disk axis. A proton nuclear magnetic resonance gauss meter is

<sup>a)</sup>Author to whom correspondence should be addressed; electronic mail: oklein@cea.fr

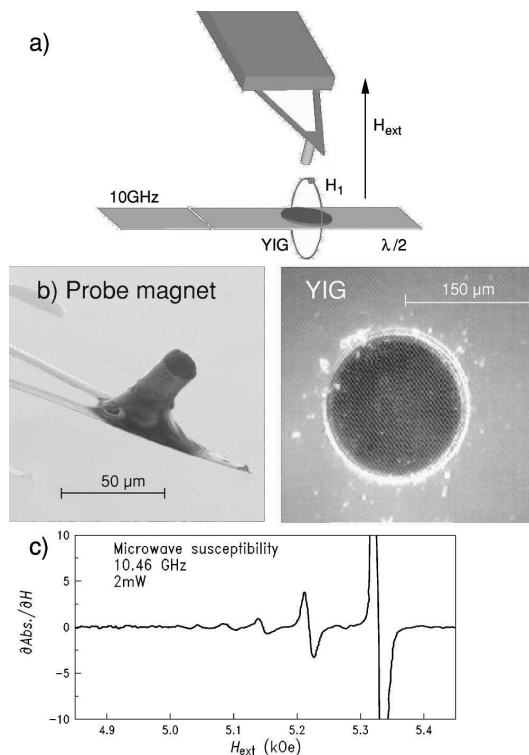


FIG. 1. (a) Schematic (not to scale) of the setup geometry used for measuring the changes of the  $z$  component of the magnetization as a function of the homogeneous static magnetic field,  $H_{\text{ext}}$  parallel to the normal of a YIG disk. The disk is set on a half-wavelength stripline resonator.  $M_z$  is sensed by a magnetic bar glued on a cantilever and positioned  $h=100 \mu\text{m}$  above the sample and on the disk axis. (b) Microscopy images of both the cylindrical probe magnet and the YIG disk. (c) Imaginary part of the microwave susceptibility of the disk.

used for the calibration of  $H_{\text{ext}}$ . The microwave field  $H_1$  is generated by a 10.46 GHz synthesizer and fed into an impedance matched strip-line resonator of length 5 mm and width 0.5 mm. The YIG disk is placed at the center of this half-wavelength resonator, with the 0.19-mm-thick GGG substrate intercalated between the YIG and the strip line. The microwave field  $H_1$  can be considered *homogeneous* (within 4%) over the volume of the sample. The sample temperature is fixed at  $T=285 \text{ K}$  and the saturation magnetization is  $4\pi M_s(T)=1815 \text{ G}$ . A magnetic bar, 18  $\mu\text{m}$  in diameter and 40  $\mu\text{m}$  in length,<sup>12</sup> is glued [see Fig. 1(b)] at the extremity of a soft cantilever (spring constant  $k=0.01 \text{ N/m}$ ). Superconducting quantum interference device measurements indicate that the room temperature saturation magnetization of our bar is around  $5 \times 10^2 \text{ emu/cm}^3$ . The bar is lifted 110  $\mu\text{m}$  above the YIG in zero field. A large separation is purposely chosen, so that the coupling between the probe magnet and the sample is weak (the magnetic field gradient produced on the sample is less than  $0.16 \text{ G}/\mu\text{m}$ ). This situation is obviously not optimal for imaging purposes, but provides a meaningful comparison with the data measured without the

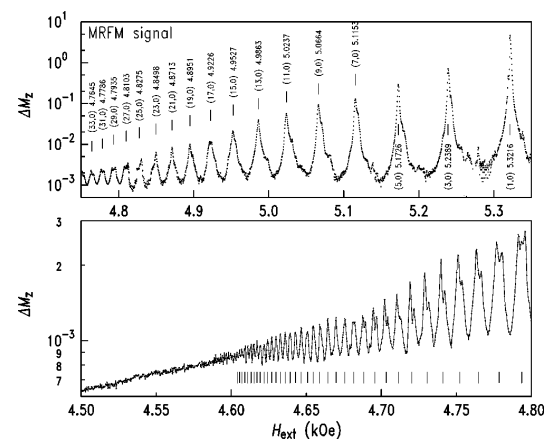


FIG. 2. Mechanically detected FMR spectrum of the normally magnetized YIG disk. The signal is proportional to the changes of the longitudinal component of the magnetization  $\Delta M_z$ . The absence of even absorption peaks,  $(2n,0)$ , is a signature that the probe is placed precisely on the symmetry axis of the disk.

bar. The dipolar field acting on the bar produces an  $\text{\AA}$  scale displacement measured by a laser beam deflection on a photodiode. When  $H_{\text{ext}}$  reaches the 0.5 T field range, the cantilever bends by 10  $\mu\text{m}$  towards the sample surface and the effective spring constant stiffens to  $k=0.2 \text{ N/m}$ . The MRFM signal is proportional to the changes of the longitudinal magnetization  $\Delta M_z$  and thus it increases linearly with microwave power ( $\propto H_1^2$ ) below saturation (the transverse component  $M_x$  being proportional to  $H_1$ ).

Figure 2 shows the field dependence of the mechanical signal when the bar is placed on the symmetry axis of the disk and the amplitude of  $H_1$  is fully modulated at the resonance frequency of the cantilever  $f_c \approx 2.8 \text{ kHz}$ . The microwave peak power is increased gradually during the sweep, from 25  $\mu\text{W}$  for the longest wavelength modes up to 2.5 mW for  $H_{\text{ext}} < 4.7 \text{ kOe}$ . The normalized result is shown on a *logarithmic* scale. A series of 50 absorption peak is resolved by our instrument thereby demonstrating the excellent sensitivity of mechanical detection. The linewidth of the peaks is of the order of 1.5 G, a typical value for YIG disks.<sup>9</sup> In FMR, the linewidth is much smaller than  $\gamma \Delta H_i$ , the field distribution inside the sample, because of the propagating character of the spin waves throughout the sample.  $\Delta H_i$  in our disk is set by the dipolar field ( $\approx 2\pi M_s$ ) and the additional broadening introduced by the probe magnet is comparatively negligible (less than 6.2 G). These findings are in sharp contrast to results obtained with paramagnetic resonance imaging where the excitation is localized to the sheet satisfying the resonance condition which leads to inhomogeneously broaden linewidth.

The theory of magnetostatic modes in thin films has been established by Damon and Eshbach in 1961<sup>13</sup> and modified by Damon and van de Vaart.<sup>7</sup> The transverse mode dispersion relation of forward volume waves can be expressed as

$$k_i = \frac{2}{S\sqrt{p}} \tan^{-1} \left( \frac{1}{\sqrt{p}} \right) \quad (1)$$

with  $p$  a parameter that equals  $p_0 = \{B_i H_i - \omega^2/\gamma^2\} / \{\omega^2/\gamma^2 - H_i^2\}$  in the absence of exchange ( $\omega$  is the frequency of excitation and  $\gamma$  is the gyromagnetic ratio).  $p$  depends on the inhomogeneous internal fields,  $H_i = H_{\text{ext}} + H_a - 4\pi M_s n_{zz}$  and  $B_i = H_i + 4\pi M_s$ , where  $n_{zz}$  is the depolarization factor and  $H_a = 58$  G the magnetocrystalline anisotropy field along the [111] direction. An analytical expression for  $n_{zz}(r, z)$  exists in the case of uniformly magnetized cylinders.<sup>14</sup> This expression, however, neglects the rotation of the magnetization close to the edge, a correction of the order  $M_s/H_{\text{ext}}$ . From Eq. (1), we infer that magnetostatic modes are propagating in the region where  $p$  is positive and are otherwise evanescent waves. One window of special interest [Fig. 2(a)] is when  $4.577 \text{ kOe} < H_{\text{ext}} < 5.375 \text{ kOe}$ , which corresponds to  $H_i < \omega/\gamma < \sqrt{H_i B_i}$  at  $r=0$ . There, the propagating region is the central part of the disk. Excited spin waves experience a force due to the internal field gradient and are accelerated radially towards the center. The wave reflects at the circle  $r=r_1$ , defined by  $p=\infty$  ( $\omega/\gamma=H_i$ ). Standing waves occur when the phase shift over a period  $4\int_0^{r_1} k(r) dr$  is equal to  $n \times 2\pi$  (the integral form incorporates the spatial nonuniformity). In this picture, the internal field distribution affects the phase delay, i.e., the locus of the resonance, but not the linewidth. In Fig. 2(b), we observe another broad absorption regime for  $H_{\text{ext}} < 4.577 \text{ kOe}$ , which has been reported by Eshbach<sup>9</sup> and corresponds to magnetoelastic modes excited by spin waves localized at the edge.

We have used Eq. (1) to calculate  $n$  as a function of  $H_{\text{ext}}$  for our sample. The resonance condition is calculated on the median plan of the disk ( $z=S/2$ ) and the result is shown as a long dashed line in Fig. 3. There is no fitting parameter or relative corrections. Our theoretical model, however, assumes a uniform magnetization in the disk and thus underestimates the resonating field of each mode [because it underestimates  $n_{zz}$  (Ref. 14)]. Magnetization nonuniformities at the periphery of the disk introduce a diminution of the radial decay of  $H_i$  near the disk center. In our picture, this is equivalent to an increase of the disk radius. We have adjusted the radius  $R=85 \mu\text{m}$  to fit the data at  $n=30$  (the optimal fitting range for the magnetostatic model). For large  $k$  ( $n > 50$ ), Eq. (1) needs to be modified to include exchange effects. In our case, this effect can be calculated as a first order correction of the characteristic equation:<sup>7</sup>

$$k_i = k_i(p_0) - \frac{D}{\gamma\hbar} \frac{B_i + H_i(1+2p_0)}{B_i H_i - (\omega/\gamma)^2} \frac{k_i^2(p_0)}{S} \times \left\{ \frac{S}{2} k_i(p_0) + \frac{1}{1+p_0} \right\} \quad (2)$$

with  $D=0.93 \times 10^{-28} \text{ erg cm}^2$  the exchange parameter. The solid line includes exchange effects and the dashed line in the inset shows the behavior if  $D$  is omitted. We have also calculated the alteration of the spectrum due to the presence

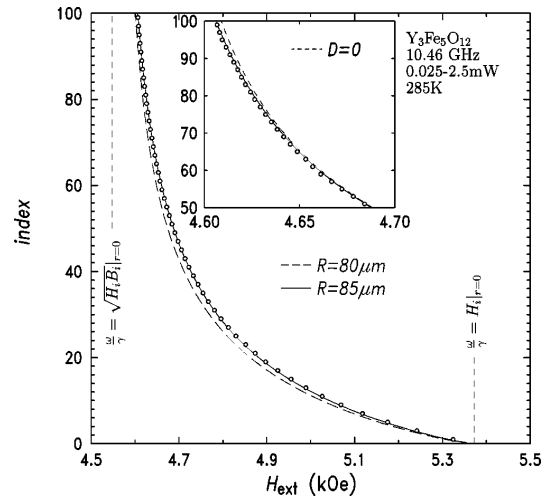


FIG. 3. Mode number  $n$  as a function of the external field ( $n$  is the number of standing waves in the diametrical direction). The open circles are the field position of each absorption peak measured in Fig. 2. The solid line is the theoretical predictions for a uniformly magnetized disk of radius  $85 \mu\text{m}$ . The long dashed line is the same calculation for  $R=80 \mu\text{m}$  (the physical dimension of the sample). The short dashed line in the inset shows the behavior when exchange effects are omitted ( $D=0$ ).

of the magnetic bar. For  $h=100 \mu\text{m}$ , the correction is small (less than 0.1%), but the changes become more important if the magnet is brought closer to the surface. The variation of the spectrum with  $h$  will be published elsewhere along with the details of the calculation. For the sake of completeness, the solid line displayed is the full result including the presence of the magnetic probe. The MRFM data agree quantitatively with the model over the full range.<sup>13</sup>

The authors are greatly indebted to C. Fermon, H. Le-Gall, O. Acher, and A. L. Adenot-Engeluin for their help and support in this work.

- <sup>1</sup>G. Albuquerque, J. Miltat, and A. Thiaville, J. Appl. Phys. **89**, 6719 (2001).
- <sup>2</sup>M. Hoffmann, O. von Geisau, S. A. Nikitov, and J. Pelzl, J. Magn. Mater. **101**, 140 (1991).
- <sup>3</sup>P. E. Wigen, Thin Solid Films **114**, 135 (1984).
- <sup>4</sup>S. Zhang, S. A. Olivier, N. E. Israeloff, and C. Vittoria, Appl. Phys. Lett. **70**, 2756 (1997).
- <sup>5</sup>Z. Zhang, P. C. Hammel, and P. E. Wigen, Appl. Phys. Lett. **68**, 2005 (1996).
- <sup>6</sup>B. J. Suh, P. C. Hammel, Z. Zhang, M. M. Midzor, M. L. Roukes, and J. R. Childress, J. Vac. Sci. Technol. B **16**, 2275 (1998).
- <sup>7</sup>R. W. Damon and H. van de Vaart, J. Appl. Phys. **36**, 3453 (1965).
- <sup>8</sup>J. F. Dillon, J. Appl. Phys. **31**, 1605 (1960).
- <sup>9</sup>J. R. Eshbach, J. Appl. Phys. **34**, 1298 (1963).
- <sup>10</sup>T. Yukawa and K. Abe, J. Appl. Phys. **45**, 3146 (1974).
- <sup>11</sup>D. J. Seagle, S. H. Charap, and J. O. Artman, J. Appl. Phys. **57**, 3706 (1985).
- <sup>12</sup>M. J. Malliavin, O. Acher, C. Boscher, F. Bertin, and V. Larin, J. Magn. Mater. **196**, 420 (1999).
- <sup>13</sup>R. W. Damon and J. R. Eshbach, J. Phys. Chem. Solids **19**, 308 (1961).
- <sup>14</sup>R. I. Joseph and E. Schlömann, J. Appl. Phys. **36**, 1579 (1965).

## Influence of the magnetic tip in ferromagnetic resonance force microscopy

V. Charbois

*Service de Physique de l'État Condensé, CEA Orme des Merisiers, F-91191 Gif-Sur-Yvette, France*

V. V. Naletov

*Service de Physique de l'État Condensé, CEA Orme des Merisiers, F-91191 Gif-Sur-Yvette, France  
and Physics Department, Kazan State University, Kazan 420008, Russia*

J. Ben Youssef

*Laboratoire de Magnétisme de Bretagne, CNRS/UMR 6135, 6 Av. Le Gorgeu, F-29285 Brest, France*

O. Klein<sup>a)</sup>

*Service de Physique de l'État Condensé, CEA Orme des Merisiers, F-91191 Gif-Sur-Yvette, France*

(Received 24 January 2002; accepted for publication 7 May 2002)

We compare mechanically detected ferromagnetic resonance spectra for different separations  $h$  between the magnetic tip and sample surface. When the bias field generated by the tip is smaller than a few hundred gauss, the prominent changes are shifts of the entire spectrum (without line shape distortions) to higher frequency as  $h$  decreases. These results are in agreement with the Damon and Eshbach model for spin waves propagating in a potential perturbed by the additional field of the probe magnet. It is used to predict the spatial resolution limit for magnetostatic modes bounded by the stray field of the tip. The answer is  $\sim 4 \mu\text{m}$  for yttrium iron garnet. © 2002 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.1489475]

Ferromagnetic resonance force microscopy (fMRFM)<sup>1</sup> is a sensitive technique developed for measuring the microwave properties of micron-size magnetic devices. The principle of the detection is inspired from magnetic force microscopy. It uses a cantilever with a magnetic tip to detect the net change of static dipole moment induced by ferromagnetic resonances (FMR).<sup>2</sup> In addition to the sensitivity gain, another important aspect of MRFM is the potency to provide local spectroscopy (e.g., local measurement of the gyromagnetic ratio, anisotropy field, relaxation times...). Local spectroscopy is easily achieved for paramagnetic spin systems, electronic<sup>3</sup> or nuclear,<sup>4,5</sup> because the excitation is localized on the sheet that satisfies the resonance condition. In a ferromagnet, however, neighboring spins are strongly coupled by the exchange interaction which leads to propagating properties of spin waves (nonlocal effects). But in particular instances, when the stray field of the tip is greater than a few hundred gauss, modes localized underneath the tip can be excited. An important query is to estimate the spatial extension of these modes.

FMR, in the presence of an additional inhomogeneous field, can be quite complicated to analyze. An important simplification of the spectrum is obtained with disk samples, since a probe magnet placed on its axis  $Oz$  preserves the axial symmetry. Another decisive choice concerns the geometry of the tip. We have chosen a cylindrical shape with large aspect ratio (length/diameter  $> 2$ ), because cylinders are the best compromise between high symmetry and strong stray field. In this study, the probe magnet is a perfect cylinder of  $18 \mu\text{m}$  in diameter and  $40 \mu\text{m}$  in length.<sup>6</sup> The material is an alloy (FeCoNi) with a room temperature saturation magneti-

zation around  $5 \times 10^2 \text{ emu/cm}^3$ .<sup>7</sup> The bar is then glued at the extremity of a  $0.6\text{-}\mu\text{m}$ -thick cantilever. The bottom face of the cylinder is placed at a distance  $h$  above the sample surface. The force and torque acting on the bar produce an Å-scale bending of the cantilever which is measured by a laser beam deflection.

The sample is a  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (YIG) single crystal grown by liquid phase epitaxy and shaped into a disk of  $S = 4.75 \mu\text{m}$  in thickness and  $R \approx 80 \mu\text{m}$  in radius. The measurements are carried out at  $T = 285 \text{ K}$ . The spontaneous magnetization of YIG at this temperature is  $4\pi M_s(T) = 1815 \text{ G}$ . A homogeneous external static field  $H_{\text{ext}}$ , well above the saturation field, is applied parallel to the disk axis. An additional rotating microwave field  $H_1$  is produced in the disk plane. It is generated by a  $10.478 \text{ GHz}$  synthesizer and fed into an impedance matched strip-line resonator (length  $5 \text{ mm}$  and width  $0.5 \text{ mm}$ ). The disk is placed at the center of this half-wavelength resonator, with the  $0.19\text{-mm}$ -thick GGG substrate interposed between the YIG and the strip line. The microwave field  $H_1$  can be considered homogeneous (within 4%) over the volume of the sample. The microwave field excites magnetostatic forward volume waves<sup>8</sup> inside the YIG. The oscillations of the transverse component of the magnetization,  $M_T$ , during the Larmor precession are several orders of magnitude faster than the mechanical resonances of the cantilever and therefore do not couple to its movement. Only the correlative decrease of the  $z$  component of the magnetization produces a measurable mechanical signal. To increase the sensitivity of the setup, the amplitude of  $H_1$  is fully modulated at the resonance frequency of the cantilever  $f_c \approx 2.8 \text{ kHz}$  and the deflection signal is measured by a phase detector.

Figure 1(b) shows the internal field distribution inside the disk when the probe magnet is placed on its axis. The

<sup>a)</sup>Author to whom correspondence should be addressed; electronic mail: oklein@cea.fr

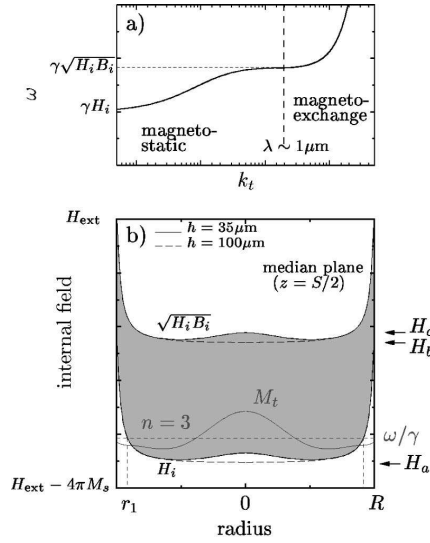


FIG. 1. (a) Dispersion relation of forward volume waves. (b) Internal field distribution on the median plane of the YIG disk ( $z = S/2$ ) for two values of  $h = 100$  and  $35 \mu\text{m}$ . The curves are the analytical solutions of a uniformly magnetized disk (see Ref. 13). The shaded area represents the propagating region for  $h = 35 \mu\text{m}$ . The situation displayed coincides with the occurrence of the mode  $n=3$ . The gray line is the profile of the transverse magnetization,  $M_t(r)$ , associated with this mode (numerical solution). Spin waves propagate along the horizontal line  $\omega/\gamma = \text{constant}$  and reflect at the circle  $r = r_1$  ( $\omega/\gamma = H_i$ ). In our representation, the  $\omega/\gamma$  line shifts downward when  $H_{\text{ext}}$  increases. With the tip withdrawn ( $h = 100 \mu\text{m}$ ), the fields  $H_a$  and  $H_b$  are landmarks between regimes where the propagation occurs either at the center or periphery. When  $h = 35 \mu\text{m}$ , a region of propagation opens up at the center of the disk between  $H_c < H_{\text{ext}} < H_b$ .

stray field of the tip introduces an inhomogeneity at the center that depends on  $h$ . Note, however, that this additional field is weak compared to the dipolar field distribution for a nonellipsoidal shape ( $\approx 2\pi M_s$  for a disk). For the settings shown in Fig. 1(b), transverse spin waves are excited in the inhomogeneous internal field region where the resonance condition is satisfied (the locus is the circle of radius  $r_1$  defined by  $\omega/\gamma = H_i$ ). The wave then experiences a force due to the internal field gradient and is accelerated radially toward the center. It reflects at the diametrical end of the circle  $r_1$ . Constructive interferences occur when the phase delay over a cycle,  $4\int_0^{r_1} k_t(r) dr$ , is equal to zero modulo  $2\pi$ , with  $k_t$  the transverse wave vector. This condition is equivalent to the WKB approximation and makes no reference to the analytical form of the solution. The formation of standing waves therefore depends on the dispersion relation of forward volume waves which has been established by Damon and Eshbach in 1961<sup>8</sup> [see Fig. 1(a)]. In the absence of exchange ( $2\pi/k_t > 1 \mu\text{m}$ ), the result is expressed as

$$k_t = \frac{2}{S} \frac{1}{\sqrt{p}} \tan^{-1} \left( \frac{1}{\sqrt{p}} \right). \quad (1)$$

$p$  is a parameter,  $p = \{B_i H_i - \omega^2/\gamma^2\} / \{\omega^2/\gamma^2 - H_i^2\}$ , which depends on the inhomogeneous internal fields,  $H_i|_{r,z} = H_{\text{ext}} + H_{\text{ani}} - 4\pi M_s n_{zz}|_{r,z} + H_{\text{tip}}|_{r,z}$  and  $B_i = H_i + 4\pi M_s$ , where  $n_{zz}$  is the depolarization factor,  $H_{\text{tip}}$  is the  $z$  component of the bias field generated by the tip and  $H_{\text{ani}} = 58 \text{ G}$  the magneto-

Downloaded 21 Jun 2002 to 132.166.19.42. Redistribution subject to AIP license or copyright, see <http://ojps.aip.org/aplo/aplcr.jsp>

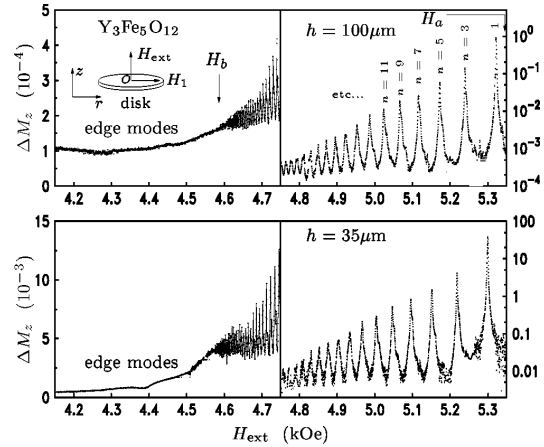


FIG. 2. Mechanically detected FMR spectra for different separation  $h$  between the tip and sample surface. The signal is proportional to the changes of the longitudinal component of the magnetization,  $\Delta M_z$ . The microwave peak power is increased gradually during the sweep, from  $25 \mu\text{W}$  for the longest wavelength modes up to  $2.5 \text{ mW}$  for  $H_{\text{ext}} < 4.7 \text{ kOe}$ . The high field regime of the spectra is presented on a logarithmic scale.

crystalline anisotropy field along the  $[111]$  direction ( $\omega/2\pi$  is the frequency of excitation and  $\gamma$  is the gyromagnetic ratio).

From Eq. (1), we infer that magnetostatic modes are propagating waves in the region where  $p$  is positive [shaded region in Fig. 1(b)] and are evanescent waves elsewhere. With the tip withdrawn ( $h \geq 100 \mu\text{m}$ ), two distinct regimes are recognized on Fig. 1(b). If  $\omega/\gamma < \sqrt{H_i B_i}|_{r=0}$  (equivalent to  $H_b < H_{\text{ext}}$ ), then the propagating region is the central part of the disk (situation described earlier). On the other hand, if  $H_{\text{ext}} < H_b$ , then the propagating region is limited to the periphery where the so-called edge modes are excited.<sup>9</sup> These modes behave differently because their wave number increases as they approach the  $\sqrt{H_i B_i}$  boundary. As a matter of fact, they develop successively into magnetoexchange then magnetoelastic waves<sup>9</sup> and continue to travel up to the disk center. Therefore, standing waves are difficult to produce and usually a high incident power is necessary to observe resonances.<sup>10</sup> Indeed, at high power, a partial reflection of magnetostatic waves is obtained through saturation of these magnetoelastic modes.

As the magnetic tip gets closer to the sample surface, one obtains first a regime of weak interaction ( $h > 30 \mu\text{m}$ ), where the dipolar field produced by the magnetic bar is a perturbation element on the propagation of spin waves. Eventually, as the tip approaches further the surface, new distribution of the modes occur inside the sample. Between  $H_c < H_{\text{ext}} < H_b$ , a pocket of propagation region appears at the disk center. The dual case also exists close to  $H_a$  where magnetostatic modes become excluded from underneath the tip. These situations are of particular interest because they favor local spectroscopy.

Figure 2 shows the field dependence of the mechanical signal for two separations  $h$  between the probe and the sample. The main feature is the strong resemblance of the two spectra. The principal change is a shift of the entire spectrum by about  $-20 \text{ Oe}$  when  $h$  decreases from  $100$  to  $35$

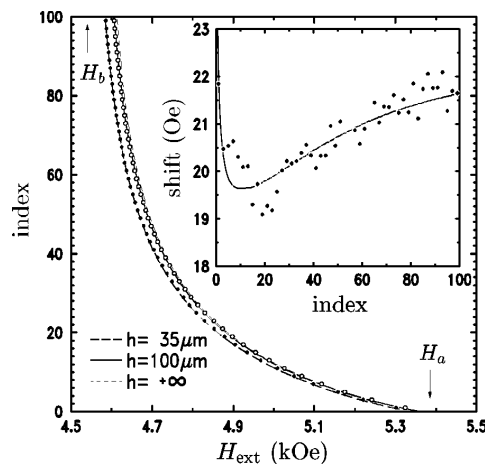


FIG. 3. Mode number  $n$  as a function of the external field ( $n$  is the number of standing waves in the diametrical direction). The open and closed circles are the field position of each absorption peak measured in Fig. 2 for  $h=100$  and  $35 \mu\text{m}$ , respectively. The lines are the theoretical predictions for a uniformly magnetized disk of radius  $85 \mu\text{m}$ . Equation (1) is modified for large  $k$  in order to include exchange effects (see Ref. 6). The inset shows the details of the shift in peak position as a function of  $n$  along with the predicted behavior (solid line). For comparison the bias produced by the tip at the disk center is  $66 \text{ G}$  when  $h=35 \mu\text{m}$ .

$\mu\text{m}$ . The shift in peak position depends slightly on the index number  $n$  and the detail is shown in the inset of Fig. 3. Together with the shift, a gain of more than one order of magnitude in signal is observed. This is attributed to the correlative increase of the magnetic field gradient (from  $\partial B/\partial z = 0.16 \text{ G}/\mu\text{m}$  to  $4.8 \text{ G}/\mu\text{m}$ ). A maximum mechanical signal is eventually reached at  $h$  around  $30 \mu\text{m}$ . The amplitude decreases if the tip approaches further. This is due to the low order modes which become excluded from the region underneath the tip and couple less to the probe. The linewidth of the fundamental mode ( $n=1$ ) is of the order of  $1.4 \text{ G}$ , a typical value for YIG disks.<sup>9</sup> It is observed that the shape and linewidth of the peaks remain mostly unchanged between the two measurements. This suggests that there is no additional contribution to the linewidth when  $h > 30 \mu\text{m}$  ( $T_2$ <sup>11</sup> process associated with the coupling between the sample and tip). We have used Eq. (1) together with the standing wave conditions discussed in the last section to calculate  $n$  as a function of  $H_{\text{ext}}$  for our sample. The result is shown on Fig. 3. The model uses a resonance condition calculated on the median plan of the disk ( $z=S/2$ ) and it neglects the in-plane component of the internal field. The agreement with the experimental data is excellent and there is no fitting parameter or relative corrections as already mentioned in Ref. 6.

We now use this model to estimate the ability of MRFM to bound magnetostatic modes within the stray field of the tip. Obviously, there are physical limits on the field strength a tip can produce. Since the standing wave condition imposes another constraint on the spatial average, it implies that the spatial extension of these modes has a minimum. Another consideration is that full confinement of magnetostatic modes only occurs by reflection off the  $H_i$  profile (the  $\sqrt{H_i B_i}$  boundary is "leaky"). Consequently, the bump of Fig. 1(b) has to be inverted into a dip, which means that the tip magnetization must be reversed with respect to  $H_{\text{ext}}$  (the equivalent for a low coercivity material is an infinite sheet with a cylindrical hole). A fair estimation of the spatial resolution is to carry out the calculation in the most favorable condition, i.e., an infinite cylinder of Fe ( $1700 \text{ emu/cm}^3$ ) brought in contact with the sample surface. We calculate the minimum diameter  $\phi$  so that one standing wave is excited between  $\pm \phi/2$ . The result is  $\phi \approx 4.2 \mu\text{m}$  for YIG.

In conclusion, MRFM of ferromagnetic samples performs poorly as far as local spectroscopy is concerned. But it still offers several decisive advantages if one is only interested in the spectroscopic response of the entire sample. The first results from the high signal sensitivity which allows small samples to be measured. The second advantage is that imaging of the magnetostatic modes can be performed by scanning the tip.<sup>12</sup> Although the excitation is nonlocal, the detection scheme still benefits from a spatially localized probe. The third advantage is that this technique is sensitive to the longitudinal component of the magnetization and thus provides information complementary to standard microwave susceptibility measurements.

The authors are greatly indebted to C. Fermon, M. Viret, H. Le Gall, and O. Acher for many useful discussions and support.

- <sup>1</sup>Z. Zhang, P. C. Hammel, and P. E. Wigen, Appl. Phys. Lett. **68**, 2005 (1996).
- <sup>2</sup>Z. Zhang and P. C. Hammel, IEEE Trans. Magn. **33**, 4047 (1997).
- <sup>3</sup>D. Rugar, C. S. Yannoni, and J. A. Sidles, Nature (London) **360**, 563 (1992).
- <sup>4</sup>D. Rugar, O. Züger, S. Hoen, C. S. Yannoni, H. M. Vieth, and R. D. Kendrick, Science **264**, 1560 (1994).
- <sup>5</sup>O. Klein, V. V. Naletov, and H. Alloul, Eur. Phys. J. B **17**, 57 (2000).
- <sup>6</sup>V. Charbois, V. V. Naletov, J. Ben Youssef, and O. Klein, J. Appl. Phys. **91**, 7337 (2002).
- <sup>7</sup>M. J. Malliavin, O. Acher, C. Boscher, F. Bertin, and V. Larin, J. Magn. Mater. **196**, 420 (1999).
- <sup>8</sup>R. W. Damon and J. R. Eshbach, J. Phys. Chem. Solids **19**, 308 (1961).
- <sup>9</sup>J. R. Eshbach, J. Appl. Phys. **34**, 1298 (1963).
- <sup>10</sup>T. Yukawa and K. Abe, J. Appl. Phys. **45**, 3146 (1974).
- <sup>11</sup>N. Bloembergen and S. Wang, Phys. Rev. **93**, 72 (1954).
- <sup>12</sup>M. M. Midzor, P. E. Wigen, D. Pelekhov, W. Chen, P. C. Hammel, and M. L. Roukes, J. Appl. Phys. **87**, 6493 (2000).
- <sup>13</sup>R. I. Joseph and E. Schlömann, J. Appl. Phys. **36**, 1579 (1965).



## Quantitative measurement of the ferromagnetic resonance signal by force detection

V. V. Naletov

Service de Physique de l'État Condensé, CEA Orme des Merisiers, F-91191 Gif-Sur-Yvette France  
and Physics Department, Kazan State University, Kazan 420008 Russia

V. Charbois, O. Klein,<sup>a)</sup> and C. Fermon

Service de Physique de l'État Condensé, CEA Orme des Merisiers, F-91191 Gif-Sur-Yvette, France

(Received 17 February 2003; accepted 11 August 2003)

A magnetic resonance force microscope is used to measure  $\Delta M_z$ , the change of longitudinal magnetization associated with the resonant absorption of microwave power in a ferromagnetic crystal. It is demonstrated that quantitative measurements of  $\Delta M_z$  can be obtained by analyzing the dipolar force exerted between a disk sample and a cylindrical probe magnet aligned and magnetized along their axis. Finite size effects are found to be important when probing the resonance in a micron-sized sample. © 2003 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.1614421]

Spin dynamics of microfabricated magnetic structures is the object of intense research owing to the potential application in spin electronic device. In 1996, Zhang *et al.*<sup>1</sup> proposed to use magnetic resonance force microscopy as a means of detecting the ferromagnetic resonances (FMRs) in individual micron-sized device. The instrument is inspired by magnetic force microscopy and it uses a cantilever with a magnetic tip to detect  $\Delta M_z$ , the change of longitudinal magnetization (component along the precession axis) exhibited when resonance modes are electromagnetically excited in the sample. The aim of this letter is to demonstrate that quantitative<sup>2</sup> measurements of  $\Delta M_z$  can be obtained by this technique.  $\Delta M_z$  is of interest because it probes the *total* number of magnons excited in the sample and thus it gives a *direct* measurement of the spin-lattice relaxation rate.<sup>3</sup> Our analysis takes into account the spatial nonuniformity of the Larmor precession at the edge of the sample. These finite-sized corrections are important when analyzing the FMR in small samples.

Our setup measures the pitch angle  $\alpha$  of a flexible cantilever, whose magnetic extremity is in interaction with the stray field of the sample. The magnetostatic field at the tip location,  $\mathbf{H} = \mathbf{H}_{\text{ext}} + \mathbf{H}_M$ , is the superposition of the homogeneous external field and the inhomogeneous dipolar field produced by the sample magnetization  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$ . In the Cartesian frame of Fig. 1, the two relevant components of the instantaneous force  $\mathbf{F}$  and torque  $\mathbf{N}$ , acting on  $\alpha$  can be expressed under the form

$$F_z = \int_{S_{\text{tip}}} dS (\mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{n}}) H_z - \int_{V_{\text{tip}}} dV (\nabla \cdot \mathbf{M}) H_z, \quad (1a)$$

$$N_y = \int_{V_{\text{tip}}} dV (\mathbf{M} \times \mathbf{H}) \cdot \hat{\mathbf{y}}, \quad (1b)$$

with  $\mathbf{M}$  the tip magnetization,  $V_{\text{tip}}$  its volume, and  $S_{\text{tip}}$  its surface with unit normal  $\hat{\mathbf{n}}$ . Inferring  $M$  from the mechanical signal can be achieved if the probe-sample interaction uses some simplifications.

<sup>a)</sup>Author to whom correspondence should be addressed; electronic mail: oklein@cea.fr

The experiments reported here are performed on a configuration that preserves the axial symmetry. A side view of the setup is shown in Fig. 1. The sample is an yttrium-iron-garnet (YIG) crystal grown by liquid-phase epitaxy along the [111] direction. The measurements are carried out at  $T = 285 \pm 0.02$  K (the microscope is temperature stabilized) and the spontaneous magnetization of YIG at this temperature is  $4\pi M_s(T) = 1815$  G. The YIG is ion milled into a disk of radius  $R_s = 80 \pm 4$   $\mu\text{m}$  and thickness  $S = 4.750 \pm 0.001$   $\mu\text{m}$  (image of the disk can be found in Ref. 4). A rod-shaped probe magnet<sup>5,6</sup> is glued at the extremity of a 0.6- $\mu\text{m}$ -thick cantilever and then aligned with the axis of the disk. Figure 1(a) shows side and top views of the probe magnet attached on the cantilever. It is a cylinder of  $R_{\text{tip}} = 9 \pm 0.5$   $\mu\text{m}$  in radius and  $L_{\text{tip}} = 32 \pm 3$   $\mu\text{m}$  in length. The external field is applied along their common axis  $\hat{\mathbf{z}}$  and its strength is well above the saturation fields of both the sample and probe magnet. Several approximations are made in our following analysis. In the first place, the cantilever does not couple to the radial component of  $\mathbf{M}$ , which oscillates at the Larmor frequency. The mechanical signal is only produced by changes of the

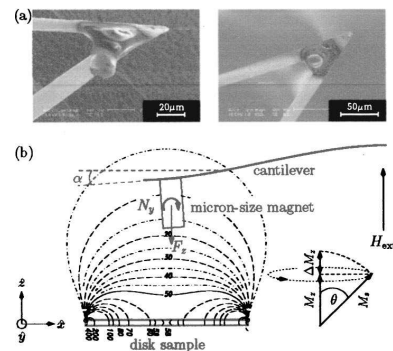


FIG. 1. (a) Images of the probe magnet glued onto the cantilever. (b) Model of our setup showing the isofield lines of the sample stray field ( $z$ -component in G). The change of the pitch angle  $\alpha$  measures the diminution of the sample longitudinal magnetization  $\Delta M_z = M_s - M_z$ . The deformation of the cantilever on the figure is greatly exaggerated: typical values of  $\alpha$  are around  $10^{-6}$  rad.

static component,  $\Delta M_z = M_s - M_z$ . Furthermore, the thickness dependence of  $M$  is neglected (thin-film approximation). Secondly, on the symmetry axis, the  $x$ -component of the dipolar field ( $H_{M_z} \cdot \hat{x}$ ) vanishes and it does not contribute to the torque. Finally,  $M$  is uniform throughout the probe magnet. In conclusion, for our particular geometry, the only relevant contribution is the first term of Eq. (1a). For a cylinder, it integrates into  $F_z = \pi R_{\text{tip}}^2 M \Delta H_z$ , with  $\Delta H_z$  the field difference across the length of the magnetic bar.

A small calibration coil is placed below the cantilever to create a well-defined field gradient at the tip location. It allows an accurate experimental determination of the first term in Eq. (1a), including the detailed shape of the probe magnet surface. Furthermore, it gives the result directly in deformation units, so that the exact value of the cantilever spring constant  $k$  or its quality factor  $Q$  is not needed for our estimation of  $\Delta M_z$ . When the field difference across the length of the magnetic bar,  $\Delta H_{\text{ref}} = (1.0 \pm 0.1) \times 10^{-5}$  G, is modulated at  $\omega_c/2\pi = 2627 \pm 0.1$  Hz (the fundamental flexure mode of the cantilever at  $H_{\text{ext}} \approx 5.3$  kG), it produces an ac displacement of the magnetic tip of amplitude  $\zeta_{\text{ref}} = 2.0 \pm 0.1$  nm.

The disk sample is then placed  $190 \pm 5$   $\mu\text{m}$  above a half-wavelength microstrip resonator connected to a 10.47-GHz high-frequency (hf) synthesizer. The strength of the microwave field  $H_1$  at the sample location, is calibrated by the saturation field of a 25- $\mu\text{m}$ -thick diphenylpicrylhydrazine (DPPH) particle (200  $\mu\text{m}$  in length, 150  $\mu\text{m}$  in width), placed on the middle of the microstrip, 300  $\mu\text{m}$  away from the center of the YIG disk. We find that the circularly polarized saturation amplitude of DPPH ( $H_1 = 0.9 \pm 0.05$  G) corresponds to an incident power of 110 mW. This experimental result is twice larger than the value calculated by a time-harmonic-based solver of our two-dimensional microstrip circuit (Sonnet Lite<sup>7</sup>). In the case of FMR in YIG, radiation effects have to be considered. It corresponds to an effective decrease of the strength of  $H_1$  at the resonance due to a detuning of the hf circuit induced by the large sample susceptibility. Looking at the increase of line width,<sup>3</sup> we find that  $H_1$  diminishes by 30% for the fundamental resonance mode. This result is consistent with the observation of an 11% increase in reflected power at resonance.

When sweeping  $H_{\text{ext}}$ , a multiplicity of FMR absorption maxima are observed<sup>4</sup> that are identified as the harmonics of the fundamental mode excited along the diametrical direction. The absence of even modes in the spectrum (magnetization rotating in opposition of phase for diametrically symmetric points) ensures that the rod and disk are properly aligned. The variation of the locus of the resonance with  $1/\ell$ , the separation between the probe and sample, can be used to calculate the magnetization of the tip.  $\alpha$  is defined as the displacement of a micrometer screw rotated until the tip establishes contact with the sample with the same deformation. The experimental result can be compared with the calculated position of each resonance within the Damon and Eschbach model,<sup>8</sup> taking into account the additional dipolar field generated by the tip. The experimental result is shown in Fig. 2 for three different modes. The data are fit by  $M$ , assuming that the probe magnet is a perfect cylinder. It gives  $M = 500 \pm 50$  emu/cm<sup>3</sup>, in agreement with superconducting

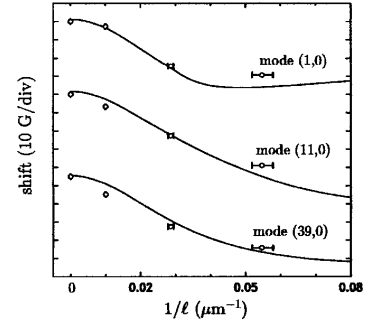


FIG. 2. Shift of the locus of the resonance with decreasing distance between the tip and sample. The data are shown for three different modes (Ref. 10). The solid lines are a fit of the data by  $M = (5.0 \pm 0.5) \times 10^2$  emu/cm<sup>3</sup> (Ref. 11).

quantum interference device measurements of the room-temperature saturation magnetization of a similar shaped bar ( $M = 5.1 \times 10^2$  emu/cm<sup>3</sup>). This reinforces the validity of the perfect cylinder model.

The calculated gradient generated by the calibration coil on a perfect cylinder of magnetization  $M$  can be used to infer  $k = Q \pi R_{\text{tip}}^2 M \Delta H_{\text{ref}} / \zeta_{\text{ref}}$ , the cantilever spring constant. Knowing that the cantilever oscillates in a vacuum cell ( $10^{-6}$  Torr) with a quality factor  $Q = 8300 \pm 50$ , it leads to a spring constant  $k = 0.5 \pm 0.1$  N/m at the bias field of 5.3 kG (a 50-fold increase in the cantilever stiffness compared to the zero-field value). Another hint is the measurement of the noise spectral density of our cantilever at  $\omega_c$ ,  $1.7 \pm 0.3$   $\text{\AA}/\sqrt{\text{Hz}}$ ,<sup>9</sup> which compares well with the thermal noise predicted for these values of the parameters  $\sqrt{4k_B T Q / (k \omega_c)} = 1.3$   $\text{\AA}/\sqrt{\text{Hz}}$ .

Accurate measurements of  $\Delta M_z$  requires us to address the issue of finite size effects. The boundary conditions of spin waves confined to a disk modifies the precession close to the edge. As an example, we study the fundamental mode (1,0),<sup>10</sup> which resonates at  $H_0 = 5324.5$  G in the regime of weak interaction<sup>11</sup> (tip retracted to  $\ell = 100 \pm 1$   $\mu\text{m}$ ). In an infinite film, this mode corresponds to a uniform precession. Figure 3 shows the precession profile calculated for our disk.<sup>12</sup> The nonuniformity produced by finite size effects is not negligible; for example, the spatial average of the longitudinal magnetization  $\Delta \bar{M}_z = 0.33 \Delta M_z|_{r=0}$ , the deviation at the center. We define  $\Delta H_{\text{calc}}$ , the calculated field drop across  $L_{\text{tip}}$  generated by such profile when the change of longitudinal magnetization at  $r=0$  is  $\Delta M_{\text{calc}}$ . Performing a numerical application, we obtain the ratio  $\Delta M_{\text{calc}} / \Delta H_{\text{calc}} = 67.5$  when

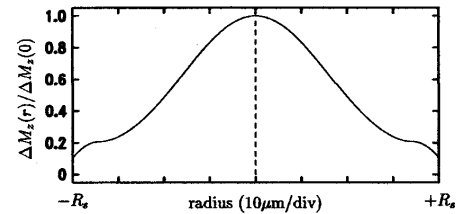


FIG. 3. Radial dependence of  $\Delta M_z$  through the disk for small precession angles ( $\theta \leq 1$ ). The resonance profile is calculated for the fundamental mode.

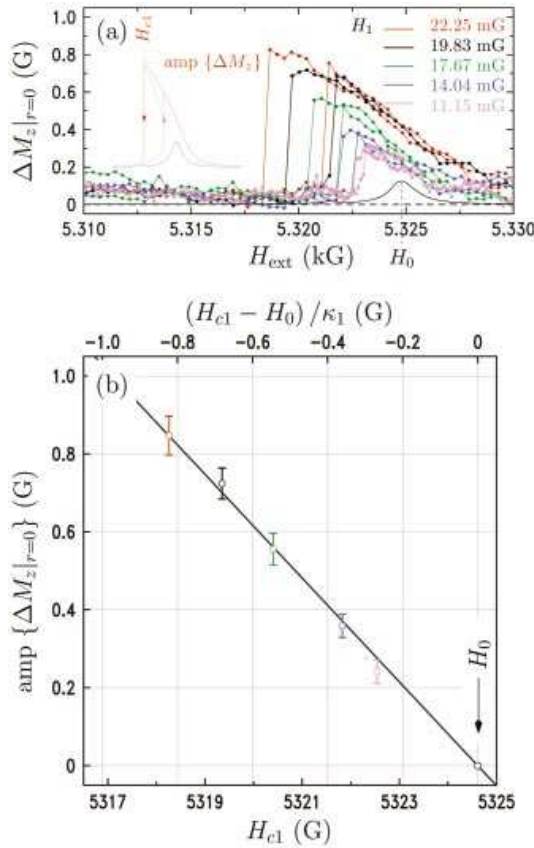


FIG. 4. (Color) (a) Up-sweep and down-sweep profile of the resonance peak at high power. The asymmetry behavior is a signature of foldover effect. The data are noisy because they are measured in static mode (source or frequency modulation cannot be used in a regime with hysteresis). For comparison, a spectrum is acquired in the linear regime ( $H_1 = 1.25$  mG); it defines  $H_0$  (here source modulation is used, thus the signal is enhanced by  $Q$ ). (b) Variation of the amplitude of the peaks as a function of  $H_{c1}$ , the switching field during the down-sweep. The shift toward low field is consistent with a lowering of  $\Delta M_z$  induced by FMR. The solid line is a linear fit through the data points, whose slope is  $-1.05 \pm 0.05$ .

the tip is retracted at a distance  $= 100 \mu\text{m}$  above the center of the disk. This result is used to translate  $\zeta$ , the rms vibration amplitude of the cantilever at  $\omega_c$ , into quantitative measurement of  $\Delta M_z$  through the formula

$$\Delta M_z|_{r=0} = 2\sqrt{2} \left( \frac{\Delta H_{\text{ref}}}{\zeta_{\text{ref}}} \right) \frac{\Delta M_{\text{calc}}}{\Delta H_{\text{calc}}} \zeta. \quad (2)$$

A measurement of the mechanical signal at very low incident power ( $-25$  dBm, i.e.,  $H_1^2 = 10^{-5} \text{ G}^2$ ), yields  $\zeta = 21 \pm 0.1 \text{ nm}_{\text{rms}}$  when the setup is source modulated at  $\omega_c$ .<sup>3</sup> This experimental result translates into a diminution  $\Delta M_z|_{r=0} = 20 \pm 2 \text{ mG}$ . A more pertinent quantity is the change of the spatial average magnetization normalized by the square of the hf field, which yields  $\Delta \bar{M}_z / H_1^2 = 660 \pm 60 \text{ G}^{-1}$ . Approximations in our model introduce some systematic errors in the value of the ratio  $\Delta M_{\text{calc}} / \Delta H_{\text{calc}}$ . An estimation of these errors can be obtained by using the results in Ref. 4. We find that our data are better described by

a disk whose radius differs by  $+6\%$  from the actual size of our sample. The difference is attributed to the uniform magnetization approximation used in the calculation of the depolarization factor. It corresponds to a change of less than  $4\%$  in the value of  $\Delta H_{\text{calc}}$ .

A consistency check is obtained by repeating the measurement at higher power, when foldover effects become important. Although there is some controversy about the exact nature of foldover asymmetry,<sup>13</sup> we find that the classical model, modified by finite size effects, describes our data properly near the onset of the nonlinear regime. The classical model assigns the foldover to the decrease of the static component of the internal field (thus shift of the resonance) when the magnetization vector is tilted away from its equilibrium axis. The locus of the resonance, observed during sweeps of  $H_{\text{ext}}$ , decreases quadratically with the precession angle  $\theta$  ( $\theta \ll 1$ ). Eventually hysteresis appears, when the shift becomes greater than the linewidth. In this picture, the shift is equal to  $-\kappa_1 \Delta M_z|_{r=0}$  where  $\kappa_1$  is obtained numerically by calculating the resonance displacement when the term  $4\pi n_z(r) \Delta M_z(r)$  is added to the internal field ( $n_z$  is the depolarization factor of the disk<sup>14</sup>). A calculation gives  $\kappa_1 = 7.43$ , a result that is specific to the mode (1,0) in our disk ( $\kappa_1 \rightarrow 4\pi$  for the uniform mode in an infinite film perpendicularly magnetized). Figure 4(a) shows the line shape asymmetry of the mechanical signal when the disk is excited at different powers without any modulation. In this case, the static mechanical signal  $\zeta$  should be multiplied by  $[(Q \Delta H_{\text{ref}} / \zeta_{\text{ref}}) \Delta M_{\text{calc}} / \Delta H_{\text{calc}}]$  to achieve transformation in  $\Delta M_z|_{r=0}$  units. In Fig. 4(b) we compare  $H_{c1}$ , the switching field during the down-sweep, with  $\text{amp}\{\Delta M_z|_{r=0}\}$ , the measured amplitude of the signal at the peak. Rescaling the abscissa by  $(H_{c1} - H_0) / \kappa_1$  (labeled on the top), we get another measurement of  $-\Delta M_z|_{r=0}$  that can be compared with the results displayed on the ordinate axis. We find that the two sets of data agree with each other.

We are greatly indebted to A.-L. Adenot-Engeluin, O. Acher, J. Ben Youssef, and H. Le Gall for their help in this work. This research was partially supported by the E.U. project M<sup>2</sup>EMS (IST-2001-34594) and the Action Concertée Nanoscience NN085.

<sup>1</sup>Z. Zhang, P. C. Hammel, and P. E. Wigen, Appl. Phys. Lett. **68**, 2005 (1996).

<sup>2</sup>K. Gnatzig, H. Dötsch, M. Ye, and A. Brockmeyer, J. Appl. Phys. **62**, 4839 (1987).

<sup>3</sup>O. Klein, V. Charbois, V. V. Naletov, and C. Fermon, Phys. Rev. B **67**, 220407 (2003).

<sup>4</sup>V. Charbois, V. V. Naletov, J. Ben Youssef, and O. Klein, J. Appl. Phys. **91**, 7337 (2002).

<sup>5</sup>M. J. Malliavin, O. Acher, C. Boscher, F. Bertin, and V. Larin, J. Magn. Mater. **196**, 420 (1999).

<sup>6</sup>The material is an alloy of  $\text{Co}_{64}\text{Fe}_{6.5}\text{Ni}_{1.5}\text{Si}_{14}\text{B}_{14}$  (at. %).

<sup>7</sup><http://www.sonnetusa.com/products/lite/index.asp>

<sup>8</sup>R. W. Damon and J. R. Eshbach, J. Phys. Chem. Solids **19**, 308 (1961).

<sup>9</sup>H. J. Butt and M. Jaschke, Nanotechnology **6**, 1 (1995).

<sup>10</sup>The index  $(n, m)$  indicates the number of nodes respectively in the radial and circumferential directions.

<sup>11</sup>V. Charbois, V. V. Naletov, J. Ben Youssef, and O. Klein, Appl. Phys. Lett. **80**, 4795 (2002).

<sup>12</sup>M. Sparks, Phys. Rev. B **1**, 3831 (1970).

<sup>13</sup>Y. K. Fetisov, C. E. Patton, and V. T. Synogach, IEEE Trans. Magn. **35**, 4511 (1999).

<sup>14</sup>R. I. Joseph and E. Schlömann, J. Appl. Phys. **36**, 1579 (1965).

# Measurement of the ferromagnetic relaxation in a micron-size sample

O. Klein,<sup>1,\*</sup> V. Charbois,<sup>1</sup> V. V. Naletov,<sup>1,2</sup> and C. Fermon<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Service de Physique de l'État Condensé, CEA Orme des Merisiers, F-91191 Gif-Sur-Yvette, France*

<sup>2</sup>*Physics Department, Kazan State University, Kazan 420008, Russia*

(Received 14 March 2003; published 27 June 2003)

It is shown that magnetic-resonance force microscopy can provide direct measurements of both the longitudinal and the transverse relaxation rates in a micron-size ferromagnetic sample. As a demonstration, we have applied the technique to a single crystal disk of yttrium iron garnet. Separation between the individual relaxation channels is achieved through a comparison of the results obtained by three different experiments: resonance linewidth measurements, source and frequency modulation, and quantitative measurement of the longitudinal magnetization.

DOI: 10.1103/PhysRevB.67.220407

PACS number(s): 76.50.+g, 07.79.Pk, 07.55.-w

One of the main applications of ferromagnetic resonance spectroscopy is to measure the dissipative term that enters in the equation of motion for the magnetization vector. The processes, whereby the total magnetization  $M$  approaches equilibrium, reveal the coupling between the spin system and the other degrees of freedom. In a spin ordered state, the spatial fluctuations of the motion (spin waves), rather than the thermal fluctuations, are the disturbances that may alter the experimentally determined value of the relaxation rate. At the microscopic scale (dimensions smaller than the exchange length), the norm of  $M$  is a constant of the motion and the dissipative term takes the phenomenological Gilbert form.<sup>1,2</sup> At the macroscopic scale, however, the conditions that determine the decay of the spatially averaged  $\bar{M}$  may be less strict. Spatial decoherence of the motion may lead to an apparent faster decay rate of the transverse component depending on the structural inhomogeneities (defects, surface roughness, etc), while the longitudinal component  $M_z$  (the  $z$  axis is defined along the precession axis) always approaches equilibrium at the intrinsic spin thermalization rate  $1/T_1$ . Different transverse and longitudinal relaxation times are accounted by the Bloembergen's equations of motion,<sup>3</sup> a form which is reminiscent of the Bloch's equations used in paramagnetic resonance. In contrast to paramagnets, the longitudinal relaxation time  $T_1$  of ferromagnets cannot be measured by either a standard pulsed decay scheme or a saturation experiment (a measurement of  $h_{\text{sat}}^2 = 1/\{\gamma^2 T_1 T_2\}$ ), because a premature "sticking" of the transverse magnetization occurs beyond the so-called Suhl threshold.<sup>4</sup> A direct determination of  $T_1$  requires an accurate measurement of the change of  $M_z$  in the small motion limit.<sup>5</sup> This was achieved 50 years ago by Bloembergen and Wang<sup>6</sup> and later by Flechter *et al.*<sup>7</sup> using a  $z$ -direct pickup coil. The approach, however, lacks the sensitivity of a standard susceptibility measurement because  $M_z \propto \cos \theta$  is a second order effect in the canting angle  $\theta$ . Therefore, it cannot be applied onto lithographically patterned thin films that compose modern spin electronic devices.

In this paper, we propose to use ferromagnetic resonance force microscopy (fMRFM) to measure the intrinsic ferromagnetic relaxation rates inside a micron-size sample. In a recent paper,<sup>8</sup> it was shown that mechanical detection affords

a very sensitive means of measuring quantitative changes in  $\bar{M}_z$ , produced when the sample absorbs energy from the high-frequency (hf) field. We will present our results obtained at room temperature on a test sample of yttrium iron garnet (YIG). The sample is a disk<sup>9</sup> of diameter  $D = 160 \mu\text{m}$  and thickness  $S = 4.75 \mu\text{m}$  perpendicularly magnetized in a static field  $H_{\text{ext}}$  of a few kilooersted and excited by microwave fields between 5 and 13.5 GHz. The distance between the sample and the probe is fixed at  $100 \mu\text{m}$  so that their coupling is in the weak-interaction regime.<sup>10</sup> The spatial average of the transverse component of the magnetization  $\bar{M}_t$  is measured independently by a standard setup (see Fig. 1). The power reflected off a half-wavelength resonator is detected by a microwave crystal diode, carefully calibrated so that the signal is square law over the measured range. The diode signal is then proportional to the microwave power absorbed,  $P_{\text{abs}} \propto \chi''$ , the imaginary part of the microwave susceptibility. For a magnetization that follows the Bloch's equation of movement, this quantity varies with  $H_{\text{ext}}$  in the same manner as  $\bar{M}_t^2$ .

In ferromagnetic resonance (FMR) studies, the conventional way of evaluating the damping coefficient is to measure the width of the absorption line at low incident power ( $P_{\text{in}} = 5 \mu\text{W}$  in our case). The shape of the resonance is obtained by scanning the magnetic field  $H_{\text{ext}}$  through the region of resonance when the microwave frequency is maintained constant at the eigenfrequency of an almost critically coupled microstrip resonator ( $f_0 = 10.47 \text{ GHz}$ ). For  $\bar{M}_z$ , a substantial gain in sensitivity can be achieved by modulating the magnetization at the fundamental flexure mode of the cantilever,  $\omega_c$ . In this section, we use source modulation, which corresponds to a modulation in amplitude of the incident microwave,  $H_1\{1 + (\epsilon/2)\cos(\omega_s t) - (\epsilon/2)\}\hat{x}$ , with  $\omega_s$  the modulation frequency,  $H_1$  the circularly polarized amplitude of the microwave field, and  $\epsilon$  the fraction of modulation. This approach is best suited for low-power studies (much below the Suhl threshold), as one can take advantage of the full amplitude ( $\epsilon = 1$ ) without inducing line-shape distortion. Figure 2(a) displays the measurement of both  $M_s - \bar{M}_z$  ( $M_s$  is the saturation magnetization at the temperature of the experiment) and  $\bar{M}_t^2$  as a function of  $H_{\text{ext}}$  on a semilogarithmic

O. KLEIN, V. CHARBOIS, V. V. NALETTOV, AND C. FERMON

PHYSICAL REVIEW B 67, 220407(R) (2003)

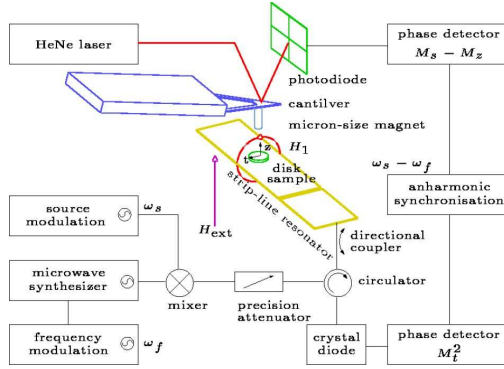


FIG. 1. Block diagram of the experimental apparatus, which measures both  $M_s - \bar{M}_z$  and  $\bar{M}_t^2$  simultaneously.

scale. We observe an intense resonance peak at 5324.5 Oe, the fundamental mode, and all the higher harmonics<sup>9</sup> are outside the figure range. It can be seen in Fig. 2(a) that the main resonance is followed by a series of two weaker peaks located on its low-field wing and  $\approx 3$  Oe apart. These weaker modes get stronger as  $\omega_s$  decreases and we tentatively ascribe them to resonances located at the interfaces air/YIG and YIG/substrate (other possibilities are flaws in the sample disk symmetry<sup>11</sup>). At this power, the shape of the main resonance is identical for both the transverse and the longitudinal

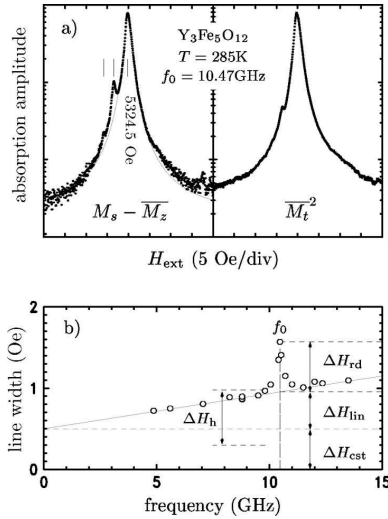


FIG. 2. (a) Line shape of the main resonance absorption line observed simultaneously along the longitudinal and transverse directions at the eigenfrequency of the microstrip resonator, 10.47 GHz. The solid line is a fit with a Lorentzian of width 1.57 Oe. (b) Frequency dependence of the linewidth measured mechanically. Contributions to the linewidth are separated between linear ( $\Delta H_{lin}$ ) and frequency-independent ( $\Delta H_{cst}$ ) relaxation channels. Homogeneous broadening ( $\Delta H_h$ ) and radiation damping effects ( $\Delta H_{rd}$ ) are indicated by arrows.

signals, and the main peaks can be fit with the same Lorentzian function of width  $\Delta H = 1.57$  Oe.

For Lorentzian shape, the phenomenological equation of motion of the magnetic moment is the Bloch-Bloembergen form:<sup>6</sup>

$$\frac{d}{dt}\bar{M}_t^2 = 2 \frac{M_s P_{abs}}{H + 4\pi(n_t - n_z)M_s + H_{anis}} - 2 \frac{\bar{M}_t^2}{T_2}, \quad (1a)$$

$$\frac{d}{dt}(M_s - \bar{M}_z) = \frac{P_{abs}}{H + 4\pi(n_t - n_z)M_s + H_{anis}} - \frac{M_s - \bar{M}_z}{T_1}, \quad (1b)$$

where  $T_2$  and  $T_1$  denote, respectively, the transverse and longitudinal relaxation times of the magnetization.  $H = H_{ext} + H_{tip}$  is the applied magnetic field (not including that of the sample), defined as the superposition of the uniform external field and stray field of the tip along  $z$ ,  $H_{anis}$  is the magneto-crystalline anisotropy field,  $(n_t, n_z)$  are the depolarization factors, respectively, transverse and longitudinal, and  $P_{abs} = \omega_0 \int_V dV M_y(r) H_1$  expresses the power absorbed inside the sample volume  $V_s$ . In the following, the transverse component of  $H_{tip}$  (nul at the center) is neglected. Although this formalism gives a simple relationship between the transverse relaxation rate and the homogeneous linewidth  $\Delta H_h = 2/(\gamma T_2)$ , it does not include inhomogeneous broadening nor does it distinguish between the different relaxation channels. Other experiments are then necessary to separate these contributions.

Further information can be obtained by performing the same measurement at different frequencies [Fig. 2(b)]. For such a small sample, the transverse signal cannot be detected if the microwave resonant circuit is detuned, hereof we have used the mechanical signal to measure the linewidth between 5 and 13.5 GHz. Three separate contributions are extracted from the data shown in Fig. 2(b). First, there is an additional broadening  $\Delta H_{rd} = 0.62$  Oe at 10.47 GHz, the eigenfrequency of the microstrip resonator. It is assigned to radiation damping. In narrow linewidth materials, one should consider the feedback of the sample susceptibility on the characteristics of the microstrip resonator. It results in a diminution of the microwave amplitude  $H_1$  around the Larmor resonance. The coupling depends on both the quality factor  $Q_L \approx 150$  and the filling factor  $\eta = \mathcal{O}(10^{-6})$  of the microwave circuit. The effect is thus negligible for all, but the measurements made with a tuned circuit. The second salient contribution is the linear frequency dependence of the linewidth, with a slope  $\Delta H_{lin}/f = 0.043$  Oe/GHz. In single-crystals of YIG,  $\Delta H_{lin}$  can be fairly well understood<sup>12</sup> as the sum of Kasuya-LeCraw mechanism<sup>13</sup> (which accounts for  $\approx 0.02$  Oe/GHz) and scattering on trace amounts of rare-earth impurities. The slope is “loosely” referred to as the Gilbert coefficient, because of its viscous character ( $\propto \partial M / \partial t$ ). This method of evaluating  $T_1$  over a broad frequency range is limited to cases where the Gilbert coefficient is independent of the microwave frequency<sup>12</sup> and the orientation of  $M$  is parallel to  $H_{ext}$ .<sup>14</sup> Finally, the third feature is a frequency-independent

220407-2

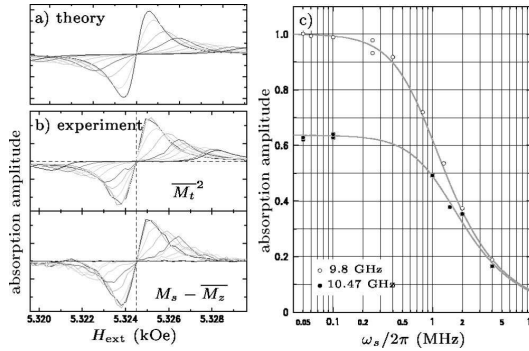


FIG. 3. Theoretical (a) and experimental (b) distortions of the anharmonic absorption line (longitudinal and transverse) for different modulation frequencies between 0.1 and 10 MHz in steps of 1 MHz. The amplitude of the frequency modulation corresponds to 10% of the linewidth. (c) Diminution of the absorption amplitude with increasing modulation frequency. The width of the 9.8 GHz bell curve gives the transverse relaxation time,  $T_2 = 162$  ns. The 10.47 GHz data are normalized to the width to illustrate the effects of radiation damping.

term  $\Delta H_{\text{ext}} = 0.50$  Oe which might be due to inhomogeneous broadening (like distortion in the disk shape symmetry) or scattering inside the magnon manifold (spin-spin processes). The later channel is usually associated with surface roughness or pits that couple the uniform precession to other degenerate spin waves.

Separation between homogeneous and inhomogeneous broadenings can be obtained by performing new experiments in which the amplitudes of the longitudinal and transverse components of the magnetization are independently observed for various modulation frequencies around  $1/T_2$  [see Fig. 3(b)]. In this fashion, Flechter *et al.*<sup>7</sup> could extract the relaxation time of all processes other than via the degenerate magnon manifold. Our longitudinal probe uses a narrow band detector limited to the audio frequency range ( $\omega_c/2\pi \approx 3$  kHz). We propose to use a scheme inspired by anharmonic modulation experiments.<sup>15</sup> The hf amplitude is fully modulated at an arbitrary frequency  $\omega_s$ , while the synthesizer is frequency modulated at  $\omega_f = \omega_s + \omega_c$ . It should be noted that the later approach is equivalent to a modulation of the polarization field. It provides, however, a broader frequency bandwidth compared to a coil technique.

Figure 3(c) shows the result for both the transverse and the longitudinal signals. The decrease of  $\bar{M}_z$  and  $\bar{M}_t$  with increasing modulation frequency  $\omega_s$  determines the homogeneous part of the broadening  $\Delta H_h$ . Concentrating first on the measurements obtained with a detuned circuit (without radiation damping), a fit of 9.8 GHz data gives  $\Delta H_h = 0.7 \pm 0.05$  Oe. The same model will yield a width of 1.1 Oe with the  $f = 10.47$  GHz data (with radiation damping). Reporting these numbers on Fig. 2(b), the individual contributions of the 1.57 Oe linewidth observed at 10.47 GHz in Fig. 2(a) can now be detailed. First, the extrinsic contributions to the broadening contain 0.3 Oe (Ref. 16) from inhomogeneous broadening and 0.62 Oe from radiation damping. The

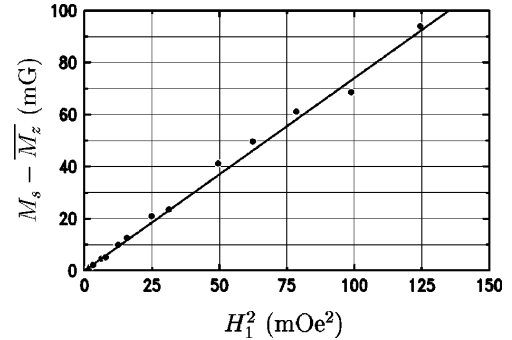


FIG. 4. Power dependence of the longitudinal component of the magnetization. The solid line is a linear fit through the data points with the slope  $(M_s - \bar{M}_z)/H_1^2 \approx 740 \text{ Oe}^{-1}$ .

amplitude of the radiation damping is of the same magnitude as  $\Delta H_h$ , which suggests that  $4\pi Q_L \eta \chi'' \approx 1$ .<sup>17</sup> The surface pits scattering accounts for 0.2 Oe, which corresponds to a spin-spin relaxation time of  $T_s = 570$  ns. The result is in agreement with Hurben and Patton<sup>14</sup> calculation of the two-magnons contribution for a normally magnetized disk of finite aspect ratio. The contribution is small because the resonance frequency of the main mode lies at the lowest point of the spin-wave spectrum so that the degenerate manifold has shrunk to almost a point.<sup>12</sup> Finally, the intrinsic contribution, inferred from the frequency-dependence data, is  $\Delta H_{\text{lin}}|_{10.47 \text{ GHz}} = 0.45$  Oe ( $1/\gamma \Delta H_{\text{lin}} = 126$  ns), which consists of Kasuya-LeCraw mechanism and relaxation from impurities.

To assess  $T_1$  directly, we propose to use our quantitative measurements of  $\bar{M}_z$ , the spatial average of the longitudinal magnetization. At resonance,

$$T_1 P_{\text{abs}} = \int_{V_s} dV \{M_s - M_z(r)\} \{H(r) - 4\pi n_z(r) M_s\}, \quad (2)$$

which can be interpreted by saying that the energy, which is transferred to the lattice in the time  $T_1$ , is equal to the diminution of magnetic energy stored in the sample. The important point is that it affords a direct method of measuring the spin-lattice relaxation rate at a fixed frequency. For a small precession angle,  $\theta \ll 1$ , the above formula can be rewritten in the more readily form  $T_1 \approx (M_s - \bar{M}_z)/(\gamma^2 H_1^2 T_2 M_s)$ . The transverse relaxation rate can be inferred from the homogeneous broadening  $\Delta H_h = 0.7$  Oe measured at 9.8 GHz. It yields a  $T_2 = 2/(\gamma \Delta H_h) = 162 \pm 10$  ns. We have plotted in Fig. 4 the measurements of the longitudinal magnetization as a function of the hf power. Using a linear fit through the data, we calculate  $T_1 = 106 \pm 10$  ns,<sup>8</sup> in agreement with our former evaluation of  $\Delta H_{\text{lin}}$ . The value is approximately equal to  $T_2/2$  which confirms that, for our geometry, the energy flows directly into lattice motions and the decay into nonuniform magnetic modes is small. Taking into account the frequency

O. KLEIN, V. CHARBOIS, V. V. NALETTOV, AND C. FERMON

PHYSICAL REVIEW B **67**, 220407(R) (2003)

dependence of  $T_1$ , the obtained result compares well with the  $T_1 = 137$  ns measured by Flechter *et al.*<sup>7</sup> at 6.2 GHz, but part of this agreement is somewhat coincidental since it depends on the sample quality.

In conclusion, this paper describes how magnetic resonance force microscopy can be applied to the measurement of  $T_1$  and  $T_2$  in ferromagnetic thin films. Another important test is the detection of the Suhl second-order instability,<sup>4</sup> but we find that the premature saturation of the transverse mag-

netization occurs at a lower microwave power than the predicted threshold. These results will be discussed in an upcoming paper.

We are greatly indebted to O. Acher, J. Ben Youssef, M. Goldman, and H. Le Gall for their help and support. This research was partially supported by the E.U. project M<sup>2</sup>EMS (Project No. IST-2001-34594) and the Action Concertée Nanoscience NN085.

\*Electronic address: oklein@cea.fr

<sup>1</sup>T.L. Gilbert, Phys. Rev. **100**, 1243 (1955).

<sup>2</sup>The Gilbert damping coefficient is proportional to  $1/T_1$  in the linear regime.

<sup>3</sup>N. Bloembergen, Phys. Rev. **78**, 572 (1950).

<sup>4</sup>H. Suhl, J. Phys. Chem. Solids **1**, 209 (1957).

<sup>5</sup>W.K. Hiebert, A. Stankiewicz, and M.R. Freeman, Phys. Rev. Lett. **79**, 1134 (1997).

<sup>6</sup>N. Bloembergen and S. Wang, Phys. Rev. **93**, 72 (1954).

<sup>7</sup>R.C. Flechter, R.C. LeCraw, and E.G. Spencer, Phys. Rev. **117**, 955 (1960).

<sup>8</sup>V. V. Naletov, V. Charbois, O. Klein, and C. Fermon (unpublished).

<sup>9</sup>V. Charbois, V.V. Naletov, J. Ben Youssef, and O. Klein, J. Appl.

Phys. **91**, 7337 (2002).

<sup>10</sup>V. Charbois, V.V. Naletov, J. Ben Youssef, and O. Klein, Appl. Phys. Lett. **80**, 4795 (2002).

<sup>11</sup>J.F. Dillon, J. Appl. Phys. **31**, 1605 (1960).

<sup>12</sup>M. Sparks, *Ferromagnetic Relaxation Theory* (McGraw-Hill, New York, 1964).

<sup>13</sup>R.C. LeCraw and E.G. Spencer, J. Phys. Soc. Jpn. **17**, 401 (1962).

<sup>14</sup>M.J. Hurben and C.E. Patton, J. Appl. Phys. **83**, 4344 (1998).

<sup>15</sup>K.J. Bruland, J. Krzystek, J.L. Garbini, and J.A. Sidles, Rev. Sci. Instrum. **66**, 2853 (1995).

<sup>16</sup>We have checked that the 0.3 Oe contribution should be assigned to a misalignment of the field with the normal of the disk.

<sup>17</sup>M.S. Seehra, Rev. Sci. Instrum. **39**, 1044 (1968).